

G

rot auslegen

Interner Bericht
DESY F35D-97-09
September 1997



X1997-01916

Strahlungsresistenz szintillierender Kunststoffasern in der Hochenergiephysik: Entstehung und Zerfall kurzlebiger Absorptionszentren

von

W. Busjan

Eigentum der Property of	DESY	Bibliothek library
Zugang: Accessions:	13. OKT. 1997	
Leihfrist: Loan period:	7	days

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"**

Strahlungsresistenz szintillierender Kunststoffasern
in der Hochenergiephysik: Entstehung und Zerfall
kurzlebiger Absorptionszentren

DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Wolfgang Busjan ✓
aus Münster

Hamburg
1997

**Strahlungsresistenz szintillierender Kunststoffasern
in der Hochenergiephysik: Entstehung und Zerfall
kurzlebiger Absorptionszentren**

DISSERTATION

**zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg**

**vorgelegt von
Wolfgang Busjan
aus Münster**

**Hamburg
1997**

Gutachter der Dissertation:

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

Gutachter der Disputation:

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

Datum der Disputation:

4. September 1997

**Sprecher des Fachbereiches Physik und
Vorsitzender des Promotionsausschusses:**

Prof. Dr. B. Kramer

Abstract

Radiation stability of scintillators is an important requirement for successful experiments in high energy physics, especially for narrow-beam calorimeters exposed to a high radiation background. Radicals absorbing visible and ultraviolet light are formed in the material during irradiation of plastic scintillators. In the work at hand, among others shortlived absorption centers for the fiber BCF12 (Bicron) were investigated, which have a negative effect on the fluorescence light and thus on the performance of the detector. Radicals generated during irradiation are mostly unstable and decay into radicals which are stable at room temperature. Shortlived absorption centers can only be detected if the investigation is carried out during and directly after the irradiation process. This corresponds to the situation in a detector, where shortlived absorption centers are formed by the radiation background during detector operation. This can decrease the transmission of light and thus impair precise detector calibration, particularly in high-dose rate environments.

Two types of absorption centers have been known for a long time: The first are stable and responsible for a permanent damage in the polymers, the second kind recovers for example when oxygen is present or in higher temperatures.

On-line investigations regarding the radiation damage during irradiation presented as part of this work have revealed a further type of absorption center with a typical mean lifetime of a few hours. These shortlived absorption centers are responsible for the dose rate dependence of the radiation damage observed.

The behaviour of BCF12 fibers during irradiation in argon is determined in the main by two broad absorption bands, ranging up to 540 nm and from 500-700 nm, respectively with a peak at a wavelength of 580 nm; these bands overlap with the emission spectrum of the scintillator. The lower band belongs to stable radicals, which decay very fast in the presence of oxygen, whereas the upper band is caused by radicals, whose kinetic is described by a second order process.

Therefore, the presence of oxygen significantly reduces the damage during irradiation. However, the reduction of Oxygen during irradiation results in an increase in damage. This has been observed for a dose rate of only 8 Gy/h during irradiation in air.

Using the measured radiation-induced absorption, the transmission loss of the fluorescence light for different geometries was calculated. The calculated and the measured loss of fluorescence light during irradiation correspond well. For a fiber with an attenuation length of 100 cm, this loss amounts to 45 % after irradiation and recovery in air with a dose of 2.5 kGy at a dose rate of 42 Gy/h. The shortest attenuation length during irradiation before recovery was calculated to 40 cm. In an oxygen-free atmosphere the calculated attenuation length for the same dose actually decreased to 11 cm.

Kurzzusammenfassung

Die Strahlungsstabilität von Szintillatoren ist eine wichtige Voraussetzung für erfolgreiche Experimente in der Hochenergiephysik, insbesondere für strahlrohrnahe Kalorimeter, die einem hohen Strahlungsuntergrund ausgesetzt sind. Während der Bestrahlung von Plastikszintillatoren entstehen im Material Radikale, die ultraviolettes und sichtbares Licht absorbieren. Gegenstand der vorliegenden Untersuchungen sind u. a. kurzlebige Absorptionszentren in der Faser BCF12 (Bicron), die das Fluoreszenzlicht und damit die Detektoreigenschaften negativ beeinflussen. Durch Strahlung induzierte Radikale sind in der Regel instabil und zerfallen sehr schnell in Radikale, die bei Raumtemperatur stabil sind. Kurzlebige Absorptionszentren können nur nachgewiesen werden, wenn die Untersuchungen während und unmittelbar nach der Bestrahlung durchgeführt werden. Dabei besteht eine Parallele zum Detektorbetrieb, wo kurzlebige Absorptionszentren durch den Strahlungsuntergrund beim Beschleunigerbetrieb entstehen. Das kann im besonderen Maße bei strahlungsintensiven Experimenten durch Transmissionsverluste die genaue Kalibrierung beeinträchtigen.

Zwei Arten von Absorptionszentren sind seit langer Zeit bekannt: Stabile Absorptionszentren bilden den permanenten Schaden, während andere Absorptionszentren z. B. in Gegenwart von Sauerstoff oder bei höheren Temperaturen abgebaut werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Online-Untersuchungen des Strahlenschadens während der Bestrahlung haben einen weiteren Typ von Absorptionszentren nachgewiesen, welche eine typische Lebensdauer von einigen Stunden aufweisen. Diese kurzlebigen Absorptionszentren sind für beobachtete Dosisleistungseffekte der Strahlenschädigung verantwortlich.

Das Verhalten der BCF12-Fasern wird im wesentlichen durch zwei breitbandige Absorptionszentren bestimmt, von denen das erste unterhalb von 540 nm und das zweite im Wellenlängenbereich von 500 nm bis 700 nm mit einem Maximum um 580 nm absorbiert. Diese Absorptionszentren absorbieren das Fluoreszenzlicht des Szintillators. Die kurzwellige Absorption gehört zu stabilen Radikalen, die in Anwesenheit von Sauerstoff sehr schnell zerfallen, während die langwellige Absorption durch Radikale verursacht wird, die mit einem Prozeß zweiter Ordnung beschrieben werden.

Die Anwesenheit von Sauerstoff reduziert deshalb die Schädigung während der Bestrahlung sehr deutlich. Der Abbau des Sauerstoffs während der Bestrahlung führt jedoch zu einem Anstieg der Schädigung, welcher für Bestrahlung in Luft schon für Dosisleistungen von 8 Gy/h beobachtet wurde.

Mit dem gemessenen Transmissionsverlust wurde die rechnerische Beschreibung der Absorptionsverluste, die das Fluoreszenzlicht erleidet, in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Fluoreszenzlichtsignal durchgeführt. Für eine Faser mit einer Abschwächlänge von 100 cm reduziert sich diese nach Bestrahlung und Ausheilung in Luft mit einer Dosis von 2,5 kGy bei 42 Gy/h demnach auf 55 cm. Die kleinste Abschwächlänge beträgt vor der Ausheilung 40 cm. In sauerstofffreier Atmosphäre reduziert sich die Abschwächlänge sogar auf 11 cm.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Röntgenstrahlung	3
2.1 Entstehung von Röntgenstrahlung	3
2.1.1 Röntgenbremsstrahlung	3
2.1.2 Charakteristische Strahlung	5
2.1.3 Winkelverteilung	6
2.2 Dosimetrie für Röntgenstrahlung	7
2.2.1 Grundlagen	7
2.2.2 Messung der Dosis mit handelsüblichen Dosimetern	10
2.2.3 Rechnerische Ermittlung der Dosis	13
2.2.4 Vergleich verschiedener Dosimeter	15
3 Einfluß auf die optischen Eigenschaften	17
3.1 Eigenschaften der untersuchten Szintillatoren	17
3.2 Einfluß der Bestrahlung auf Polymere	18
3.3 Definition des Strahlenschadens	19
4 Die Experimente	23
4.1 Bestrahlungen mit der Röntgenröhre	23
4.1.1 Aufbau der Bestrahlungseinrichtung	23
4.1.2 Flächendosisverteilung der Röntgenquelle	25
4.2 Messung des Strahlenschadens	26
4.2.1 Aufbau der Meßapparatur	26
4.2.2 Eigenschaften der Meßapparatur	28
5 Beschreibung der Kinetik	31
5.1 Radikalbildung während der Bestrahlung	31
5.2 Das Käfigmodell	33

5.2.1 Berücksichtigung eines Zerfalls zweiter Ordnung	35
5.2.2 Berücksichtigung eines Zerfalls erster Ordnung	38
5.3 Radikalabbau nach der Bestrahlung	39
5.3.1 Reaktion zweiter Ordnung	39
5.3.2 Reaktion erster Ordnung	40
5.4 Überlagerung verschiedener Absorptionen	40
6 Untersuchungen der Faser BCF12	43
6.1 Vorbemerkungen	43
6.2 Einfluß der Umgebungsatmosphäre auf den Strahlenschaden	43
6.3 Zeitliche Entwicklung während der Bestrahlung	44
6.3.1 Radikalbildung während der Bestrahlung in Argon	45
6.3.2 Einfluß des gelösten Sauerstoffs	46
6.3.3 Radikalbildung während der Bestrahlung in Luft	49
6.4 Zeitliche Entwicklung nach der Bestrahlung	52
6.4.1 Ausheilung in Argon	52
6.4.2 Ausheilung unter Sauerstoffeinfluß	52
6.5 Kinetik der Radikalentwicklung	55
6.5.1 Entwicklung in Argon	55
6.5.2 Entwicklung in Luft	67
6.6 Auswirkungen auf das Fluoreszenzlicht	71
6.6.1 Einflüsse durch Transmissionseffekte	71
6.6.2 Änderung der primären Lichtausbeute	72
6.6.3 Effektive Abschwächlänge	73
7 Bestrahlung der Faser SCSF81(Y7) in Luft	79
7.1 Zeitliche Entwicklung während und nach der Bestrahlung	79
7.2 Kinetik der Radikalentwicklung	80
8 Zusammenfassung	85
A Ergänzungen	87
A.1 Das Programm PHOTCOEF	87
A.2 Mathematische Beschreibung des Fluoreszenzsignals	88
A.2.1 Transmissionsverluste	88
A.2.2 Effektive Abschwächlänge	90
A.3 Parameter zur Absorptionsentwicklung	91

A.3.1	Vorbemerkungen	91
A.3.2	Tabellen	92
A.4	Verzeichnis der Bestrahlungen	93
A.4.1	Durchgeführte Bestrahlungen	93
A.4.2	Daten in den Abbildungen	94
B	Verwendete Abkürzungen	97
	Literaturverzeichnis	99
	Stichwortverzeichnis	105

Abbildungsverzeichnis

2.1	Prinzipzeichnung einer Röntgenröhre	3
2.2	Berechnetes Bremspektrum	5
2.3	Berechnetes Brems- und Linienspektrum	7
2.4	Verschleiß der Röntgenröhre	8
2.5	Reichweite von Elektronen	8
2.6	Massenabsorptionskoeffizienten für Röntgenstrahlung	9
2.7	Transmissionsverlust der Radiachrome	12
2.8	Dosisbestimmung mit Radiachrome	13
2.9	Röntgenspektrum in der Kammer	14
3.1	Strukturformel von Polystyrol	17
3.2	Lichtweg in einer Faser	18
3.3	Transmission und Absorption	20
3.4	Spektrale Absorptionsentwicklung	22
4.1	Fluoreszenzsignal	24
4.2	Aufbau der Bestrahlungseinrichtung	25
4.3	Flächendosisverteilung im Röntgengerät	26
4.4	Aufbau der Meßapparatur	27
4.5	Stabilität der Meßeinrichtung, BCF12	28
4.6	Stabilität der Meßeinrichtung, SCSF81(Y7)	29
5.1	Schematische Kinetik des Käfigmodells	37
5.2	Propagation	42
6.1	Vergleich Bestrahlung Argon — Luft	44
6.2	Schadensanstieg BCF12 - 430 nm Argon	44
6.3	Strahlenschaden (BCF12) während der Bestrahlung in Argon	45
6.4	BCF12 - Argon - Dosisleistungsabhängigkeit (420 nm)	47
6.5	BCF12 - Argon - Dosisleistungsabhängigkeit (580 nm)	47

6.6	Strahlenschaden während der Bestrahlung in Argon	48
6.7	Erste Bestrahlungsphase in Argon (460 nm)	49
6.8	BCF12 - Luft - 8,8 Gy/h (580 nm)	50
6.9	BCF12 - Luft - 42 Gy/h (580 nm)	50
6.10	BCF12 - Luft - Dosisleistungsabhängigkeit (420 nm)	51
6.11	BCF12 - Argon - Ausheilung mit Sauerstoff	52
6.12	BCF12 - Ausheilung mit Sauerstoff	53
6.13	BCF12 - Bestrahlung und Ausheilung in Luft	54
6.14	BCF12 - Spektren der Ausheilung in Luft	54
6.15	Wirkungsquerschnitt zu Beginn der Bestrahlung	55
6.16	Kinetik der ersten Bestrahlungsphase	56
6.17	Erster Schadensanstieg bei 420 und 580 nm	56
6.18	Wirkungsquerschnitt für P und R_2	57
6.19	Käfigmodell	58
6.20	BCF12 - Steigungsbestimmung	59
6.21	BCF12 - Anpassung des Käfigmodells	59
6.22	Reaktionskonstante bei Verbrauch von Sauerstoff	60
6.23	Wirkungsquerschnitt für R_1 und R_2 und P	61
6.24	BCF12 - Bestrahlung ohne Sauerstoffeinfluß	61
6.25	Strahlenschaden während der Bestrahlung in Argon	62
6.26	BCF12 - Argon - Anstieg und Abfall	63
6.27	BCF12 - Argon - Vergleich zweier Schadensverläufe	64
6.28	Anwendung der Parameter auf den Anstieg	65
6.29	Anwendung der Parameter auf die Ausheilung	66
6.30	BCF12 - Luft - Ausheilung	67
6.31	Vergleich Ausheilung durch Sauerstoff nach Bestrahlung	67
6.32	BCF12 - Luft - Prozeß 2. Ordnung	68
6.33	BCF12 - Luft - Anstieg und permanenter Schaden	69
6.34	BCF12 - Sättigungsabsorptionen	70
6.35	BCF12 - Absorption und Fluoreszenz	71
6.36	Fluoreszenz bei Bestrahlung in Argon	72
6.37	Quenching von BCF12	73
6.38	Fluoreszenz bei Bestrahlung in Argon	74
6.39	BCF12 - Luft - effektive Abschwächlänge	74
6.40	BCF12 - effektive Abschwächlänge	75

6.41	Fluoreszenzsignal bei Bestrahlung in Luft	76
6.42	Fluoreszenzsignal zu Beginn Bestrahlung in Luft	77
7.1	SCSF81(Y7) - Bestrahlung und Ausheilung in Luft	80
7.2	SCSF81(Y7) - Spektren der Ausheilung in Luft	81
7.3	Wirkungsquerschnitt für SCSF81(Y7)	81
7.4	Steigungen für SCSF81(Y7)	82
7.5	SCSF81(Y7) - Luft - Prozeß 2. Ordnung	82
7.6	SCSF81(Y7) - Luft - Kinetik 630 nm	83
7.7	SCSF81(Y7) - Luft - Kinetik 510 nm	83
A.1	Massenabsorptionskoeffizienten Pb, Al, Polystyrol	88
A.2	Fluoreszenzspektrum von BCF12	89
A.3	Weg des Fluoreszenzlichtes	89

Kapitel 1

Einleitung

In vielen Experimenten der Hochenergiephysik kommen zur Energiemessung der nachzuweisenden Teilchen Szintillatoren zum Einsatz, deren Basismaterialien aus organischen Verbindungen aufgebaut sind. Die im Experiment auftretende Untergrundstrahlung bewirkt Veränderungen der optischen Eigenschaften der Szintillatoren. Dieser Einfluß wird umso größer, je näher die Szintillatoren am Wechselwirkungspunkt eingesetzt werden.

Am Deutschen Elektronen-Synchrotron (DESY) in Hamburg wird im H1-Experiment im Bereich der zurückgestreuten Elektronen ein sogenanntes Spaghetti-Kalorimeter (SpaCal) eingesetzt. Für dieses Kalorimeter bestehen besonders hohe Anforderungen bezüglich der Ortsauflösung und der Strahlenhärte, weil dieses Kalorimeter sehr nah an das Strahlrohr heranreicht. Der H1-Detektor kommt in der Hadron-Elektron-Ring-Anlage HERA zum Einsatz, in der Kollisionen von Elektronen und Protonen bei einer Schwerpunktsenergie von zur Zeit 300 GeV durchgeführt werden. Die im strahlrohrnahen Spaghetti-Kalorimeter installierten Szintillationsfasern (BCF12 der Firma Bicron) übernehmen dabei die Energiemessung der Elektronen und Hadronen mit einer Energieauflösung von $7,2\%/\sqrt{E} \oplus 0,6\%$ [WB93], wobei die Energie E in GeV eingesetzt wird. Das in den Fasern erzeugte Szintillationslicht ist proportional zur Energie der Teilchen. Wird durch den Einfluß der Untergrundstrahlung die optische Qualität oder Lichtausbeute eines Szintillators verändert, kann dies die Energieauflösung des Kalorimeters beeinträchtigen. Das gilt im besonderen Maße für lange Fasern, innerhalb derer das Szintillationslicht durch veränderte optische Eigenschaften merklich abgeschwächt werden kann. Als Ursache solcher Veränderungen werden Absorptionszentren angesehen, die häufig radikalischen Ursprungs sind.

Zum genaueren Verständnis dieser Absorptionszentren dienen Untersuchungen, die das zeitliche Verhalten der Szintillatoren bezüglich der einwirkenden Bestrahlung und der äußeren Bedingungen wie der umgebenden Gasatmosphäre aufklären. Für das zeitliche Verhalten zeigt sich, daß in Szintillatoren kurzlebige Absorptionszentren entstehen, die Lebensdauern von nur wenigen Stunden bis Tagen aufweisen. Zum Nachweis solcher Absorptionen ist eine simultane Bestrahlung und Untersuchung der Fasern unerlässlich. Zu diesem Zweck wurde eine Meßeinrichtung installiert, mit der Bestrahlung und Untersuchung unabhängig voneinander zur selben Zeit durchgeführt werden können. Dabei wurden die Fasern sowohl in sauerstoffhaltiger als

auch in sauerstofffreier Atmosphäre bestrahlt.

Die Bestrahlungen zur Online-Untersuchung wurden mit einer Röntgenröhre durchgeführt. Daraus ergeben sich für die Dosimetrie besondere Schwierigkeiten, weil die Röntgenröhre ein kontinuierliches Spektrum von Photonen aussendet und die Meßeinrichtungen für die Dosismessung im allgemeinen mit monoenergetischer Kobalt-60 Strahlung kalibriert werden. Deshalb wird im zweiten Kapitel ein vereinfachtes rechnerisches Verfahren zur Dosisbestimmung unter Berücksichtigung gemessener Dosen vorgestellt.

Mit Hilfe der Transmissionsspektroskopie wurden die einzelnen kinetischen Vorgänge innerhalb der Kunststoffasern untersucht. Diese Methode läßt es zu, verschiedene Vorgänge, die unterschiedliches spektrales Verhalten zeigen, voneinander zu trennen. Diese Unterscheidung wird durch eine andauernde Messung während und nach der Bestrahlung ermöglicht: Da die Absorptionszentren in der zeitlichen Entwicklung stark voneinander abweichen, kann auch in dieser Hinsicht eine Trennung vorgenommen werden.

Von großem Interesse für die Detektorphysik ist der Einfluß der strahleninduzierten Absorptionen auf das Fluoreszenzlicht. Die wellenlängenaufgelöste Absorptionsbestimmung ermöglicht die quantitative Beschreibung der Transmissionsverluste, die das Fluoreszenzlicht betreffen. Damit ist die Übertragung der aus den vorliegenden Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse auch auf andere Geometrien möglich. Für Faserlängen, wie sie in Detektoren zum Einsatz kommen, wird die Berechnung der Abschwächlängen und der möglichen Fluoreszenzlichtverluste durch Absorptionen abschließend durchgeführt.

Kapitel 2

Röntgenstrahlung

2.1 Entstehung von Röntgenstrahlung

2.1.1 Röntgenbremsstrahlung

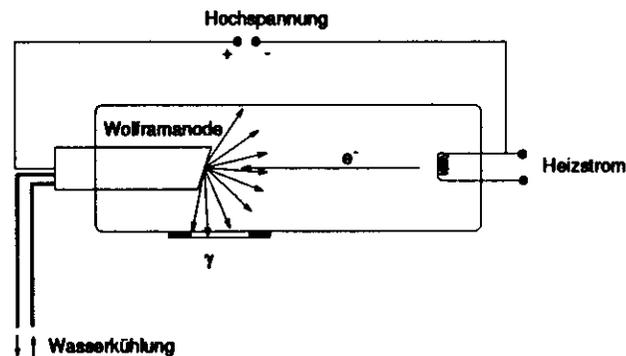


Abbildung 2.1: Prinzipzeichnung einer Röntgenröhre

Treffen Elektronen auf Materie, verlieren sie ihre Energie durch Stöße mit den Elektronen des Materials, dessen Atome angeregt oder ionisiert werden. In einer Röntgenröhre (Abb. 2.1) werden dafür Elektronen aus einer Glühkathode mit einer Hochspannung beschleunigt; sie prallen dann auf die Anode und werden im Anodenmaterial (Wolfram) abgebremst. Aufgrund der starken Wärmeentwicklung ist eine Wasserkühlung der Anode notwendig. Die Elektronen geben ihre Energie aber nicht nur in Form von Wärme ab, in wenigen Fällen können die Elektronen ihre Energie auch bei Ablenkung im elektrischen Feld der Atomkerne in sehr großen Beträgen verlieren. Die Energieabgabe erfolgt dabei in Form elektromagnetischer Wellen; ein Elektron kann dabei höchstens seine gesamte kinetische Energie auf einmal abgeben. Auf diese Weise liefern monoenergetische Elektronen ein kontinuierliches Strahlungsspektrum bis zur Maximalenergie, die der kinetischen Energie der Elektronen entspricht; diese Strahlung wird als Bremsstrahlung bezeichnet. Der Wirkungsgrad

η bei der Erzeugung der Röntgenstrahlung hängt von der Ordnungszahl Z des Absorbers und der angelegten Hochspannung ab [Dys90]:

$$\eta \approx 1 \cdot 10^{-6} Z \frac{U}{\text{kV}} ; \quad (2.1)$$

für Wolfram führt das bei einer Spannung von 100 kV auf einen Wirkungsgrad von knapp 1 %.

Für ein dickes Target, d. h. wenn alle Elektronen im Target absorbiert werden, ergibt sich ein linearer Zusammenhang [MB93] zwischen der Frequenz ν und der Intensität $I(\nu)$ der Bremsstrahlung, der experimentell [Dys90, S. 15 ff] unter einem Winkel von 90° zum einfallenden Elektronenstrahl bestätigt wurde:

$$I(\nu) \approx CZ(\nu_{\max} - \nu) \quad (2.2)$$

$$C = \frac{8\pi h e^2 Z}{3\sqrt{3} l c^3 m}$$

Der Faktor C enthält unter anderem neben einem numerischen Faktor l mit einem Wert um 6 noch die Ordnungszahl Z des Anodenmaterials. Die absolute Intensität hängt neben der maximalen Frequenz, festgelegt durch die kinetische Energie der Elektronen, auch vom Anodenmaterial ab. Bei der vorliegenden Röhre handelt es sich dabei um Wolfram mit einer Ordnungszahl von 74.

Setzt man die integrierten Intensitäten bezüglich Energie, Frequenz und Wellenlänge gleich, lassen sich die Intensitätsverteilungen ineinander umformen:

$$I(E) |dE| = I(\nu) |d\nu| = I(\lambda) |d\lambda| \quad (2.3)$$

ergibt mit $c = \lambda \nu$

$$I(\lambda) = \frac{c}{\lambda^2} I(\nu) ; \quad (2.4)$$

eingesetzt in Gleichung 2.2 ergibt sich der Zusammenhang für das Wellenlängenspektrum der Bremsstrahlung (Abb. 2.2):

$$I(\lambda) \approx C c^2 Z \frac{\lambda - \lambda_{\min}}{\lambda^3 \lambda_{\min}} \quad (2.5)$$

Durch Differentiation erhält man für die Wellenlänge $\bar{\lambda}$ mit der größten Intensität:

$$\bar{\lambda} = \frac{3}{2} \lambda_{\min} \quad (2.6)$$

Das Energiespektrum $I(E)$ folgt aus Gleichung 2.2:

$$I(E) = \frac{C}{h^2} \cdot Z \cdot (E_{\max} - E) \quad (2.7)$$

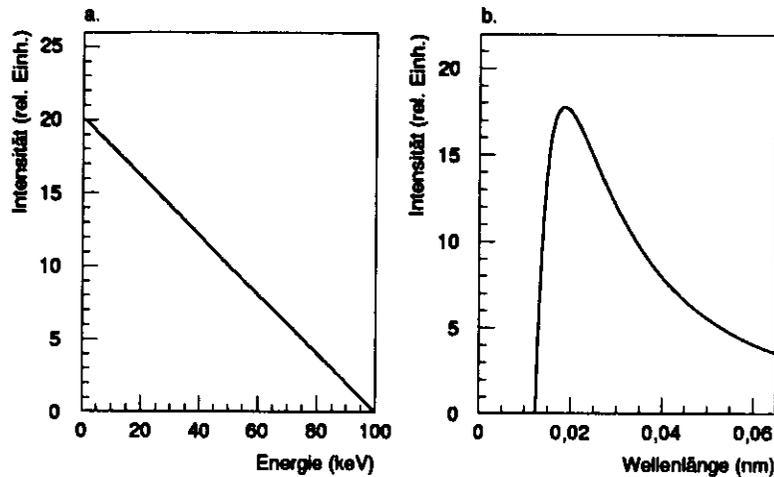


Abbildung 2.2: Berechnetes Röntgenbremsspektrum als Funktion der Energie (a.) nach Gleichung 2.7 bzw. der Wellenlänge (b.) nach Gleichung 2.5

Zu beachten ist, daß mit der Intensität der Energiefluß gemeint ist; um auf die Anzahl der Photonen pro Energieintervall zu kommen, muß noch durch die Energie der Photonen geteilt werden:

$$N(E) = \frac{I(E)}{E} = \frac{C}{h^2} \cdot Z \cdot \left(\frac{E_{\max}}{E} - 1 \right) \quad (2.8)$$

2.1.2 Charakteristische Strahlung

Ein großer Teil der Energieabgabe der beschleunigten Elektronen erfolgt über Ionisationen des Anodenmaterials. Die Rekombinationen der Atome erzeugen elektromagnetische Wellen, welche nur im Falle großer Energien das Anodenmaterial wahrscheinlich verlassen können. Dies ist bei Ionisation der K- bzw. L-Schale der Fall. Für den Fall ausreichender kinetischer Energie der Elektronen ($E_{\text{kin}} > E_K$ bzw. E_L) können Abregungen auf diese Schalen stattfinden; man spricht von K_α -Strahlung, wenn der Übergang aus der L-Schale in die K-Schale stattfindet und von K_β -Strahlung, wenn der Übergang aus der M-Schale oder der N-Schale in die K-Schale erfolgt. Zusätzlich wird ein Zählinde für die Übergänge aus Niveaus mit unterschiedlichem Gesamtdrehimpuls j eingeführt. Für Dipolübergänge gilt bezüglich des Bahndrehimpulses l die Auswahlregel $\Delta l = \pm 1$, wodurch nicht alle Übergänge zwischen den Energieniveaus möglich sind.

Die Intensität der charakteristischen Strahlung hängt von der Beschleunigungsspan-

Übergang	Energie (keV)	rel. Intensität
$K_{\alpha 1}$	59,32	50,5
$K_{\alpha 2}$	57,98	29
$K_{\beta 1}$	67,24	11
$K_{\beta 2}$	69,1 69,0	4
$K_{\beta 3}$	66,95	5,5
		$\Sigma = 100$

Tabelle 2.1: Relative Intensitäten der charakteristischen Röntgenstrahlung für Wolfram nach [PK92]

nung der Röhre ab; sie setzt für Wolfram bei der Absorptionsenergie der K-Schale von 69,508 keV ein und hat für die K_α -Strahlung bei einer Beschleunigungsspannung von 100 kV eine relative Intensität von knapp drei Prozent [Dys90, S. 121] in bezug auf die kontinuierliche Bremsstrahlung. Die relativen Intensitäten der einzelnen Übergänge sind in Tabelle 2.1 angegeben.

Damit läßt sich der Anteil der einzelnen charakteristischen Linien am Gesamtspektrum festlegen; das damit gewonnene Spektrum zeigt Abb. 2.3. Die Breite Γ der charakteristischen Linien ist über die Heisenbergsche Unschärferelation mit der Lebensdauer τ des Übergangs verknüpft, es gilt $\Gamma \cdot \tau \geq \hbar$. Experimentell wurde ein linearer Zusammenhang zwischen der Linienbreite der K-Linien und der Ordnungszahl des Anodenmaterials nachgewiesen; für Wolfram beträgt die Breite etwa 40 eV [Dys90], die Breite der L-Linien ist kleiner.

Für die weiteren Berechnungen wird das Spektrum der Röntgenstrahlung für einzelne Energien mit der Breite 1 keV eingeteilt; damit wird das Spektrum durch ein Histogramm mit 100 Einträgen beschrieben. Davon ausgehend kann für jede einzelne Energie mit Hilfe bekannter Absorptionskoeffizienten die Wechselwirkung mit Materie berechnet werden.

2.1.3 Winkelverteilung

Die Winkelverteilung der Bremsstrahlung läßt sich für einzelne Energien berechnen [Dys90]. Hierbei ergeben sich nur leichte Abhängigkeiten der Intensität vom Winkel der Abstrahlung. Deutliche Änderungen in der Intensität treten für sehr kleine Winkel zwischen Abstrahlung und Anode auf und sind auf Absorptionen im Anodenmaterial zurückzuführen. Beobachtet wurden diese Absorptionen für kleinere Winkel als 5° .

Auch die Beschaffenheit der Anodenoberfläche hat Einfluß auf die Winkelverteilung der Röntgenstrahlung. Insbesondere nach längerer Benutzung rauht die Anodenoberfläche durch Abnutzung auf. Das hat zur Folge, daß ein Teil der entstandenen Strahlung Anodenmaterial durchqueren muß. Das führt zu einer Aufhärtung

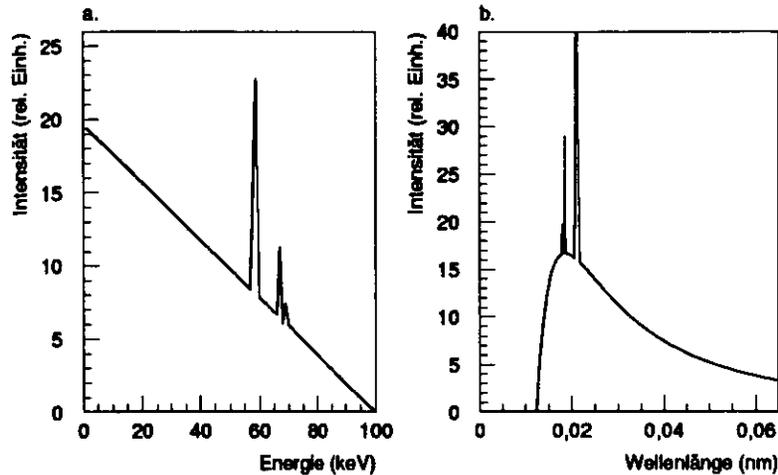


Abbildung 2.3: Berechnetes Röntgenspektrum als Funktion der Energie (a.) bzw. der Wellenlänge (b.) mit Berücksichtigung der charakteristischen Strahlung

der Strahlung. Mit Aufhärtung wird die Verschiebung des Spektrums zu höheren Energien bezeichnet. Sie kommt durch die stärkere Absorption von niederenergetischer Strahlung im Energiebereich der Röntgenstrahlung zustande (Abb. 2.6). Diese Aufhärtung ist umso stärker, je größer die Absorption ist. Für kleinere Winkel zwischen Anode und Emissionsrichtung ist das zu durchdringende Anodenmaterial dicker als für größere Winkel (Abb. 2.4).

Eine Aufrauhung führt durch die zusätzlichen Absorptionen zu einer Abnahme der Gesamtintensität der Röntgenstrahlung. Daher ist eine regelmäßige Kontrolle der Dosisleistung sinnvoll.

2.2 Dosimetrie für Röntgenstrahlung

2.2.1 Grundlagen

Die Energieabgabe von γ -Quanten beim Durchqueren von Materie erfolgt im interessierenden Energiebereich bis 100 keV durch Photoeffekt oder durch Comptoneffekt, beschrieben durch den Massenschwächungskoeffizienten μ . Die Energieabgabe durch Bremsstrahlung ist für leichte Materialien vernachlässigbar (0,7‰ in Wasser für 100 keV-Elektronen [Tur95]). Die Elektronen, welche die Energie der γ -Quanten aufnehmen, durchqueren das Material weiter, und sie verlieren ihre kinetische Energie durch Stöße mit anderen Atomen, die ihrerseits ionisiert werden. Auf diese Weise

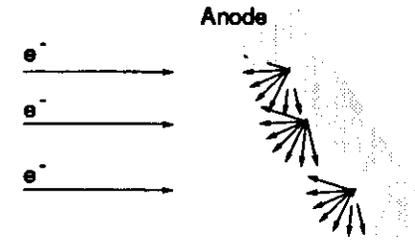


Abbildung 2.4: Der Gebrauch der Röntgenröhre führt zu einem Verschleiß der Anode, der schematisch dargestellt ist. Diese Oberflächenveränderung hat eine leichte Aufhärtung der Strahlung durch Absorptionen zur Folge.

wird durch ein γ -Quant eine größere Anzahl von Ionisationen bewirkt; allerdings werden (abgesehen von der Primäronisation) alle Ionisationen durch Elektronen bewirkt. Für Wasser mit einer mittleren Ionisationsenergie von 22 eV kann eine Primäronisation einige hundert weitere Ionisationen nach sich ziehen. Der Durchgang der γ -Quanten durch die Materie führt so zu einem Fluß von sog. Sekundärelektronen. Vom Sekundärelektronengleichgewicht spricht man, wenn in ein bestimmtes Volumen genauso viele Sekundärteilchen eintreten wie austreten; das heißt, die Energiedeposition ist homogen, solange keine merkliche Schwächung der Primärstrahlung eintritt. Das Erreichen des Sekundärelektronengleichgewichtes hängt von der Energie der Strahlung und der Art des bestrahlten Materials ab. In der Regel ist es erreicht, wenn die Strahlung eine Schichtdicke durchqueren muß, welche der mittleren Reichweite der Elektronen entspricht. Für leichte Materialien ist die Reichweite umgekehrt proportional zur Dichte; für Polystyrol ergibt sich eine mittlere Reichweite der Elektronen (100 keV) von 1/8 mm (Abb. 2.5). Für die Reichweite R der Elektronen in leichten Materialien gilt für Energien E zwischen 10 keV und 2,5 MeV [Tur95]:

$$R \cdot \rho = 0,412 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2} \cdot \left(\frac{E}{\text{MeV}} \right)^{1,27 - 0,0954 \cdot \ln(E/\text{MeV})} \quad (2.9)$$

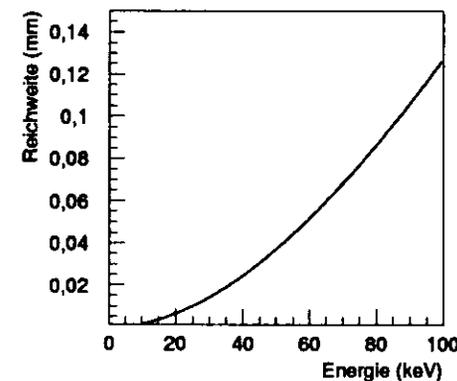


Abbildung 2.5: Reichweite von Elektronen in Polystyrol nach Gleichung 2.9

Da der Bremsweg für die Elektronen im Material verglichen mit dem der γ -Quanten sehr klein ist, erfolgt fast die gesamte Energiedeposition im Material durch die Elektronen. Aber nicht sämtliche im Material umgewandelte Energie wird als kinetische Energie den Elektronen für Ionisationen zur Verfügung gestellt: Nach einer Ionisation in einer inneren Schale eines Atoms wird diese Schale von äußeren Elektronen unter Emission von Photonen, die das Material verlassen können oder ohne Ionisation absorbiert werden, aufgefüllt. Dadurch geht Energie verloren, die nicht für weitere Ionisationen sorgen kann. Das spiegelt sich im Vergleich zum Massenschwächungskoeffizienten μ im niedrigeren Energieumwandlungskoeffizienten μ_{tr} (früher η) wider. Ein möglicher Bremsstrahlungsverlust der Elektronen wird im Massenabsorptionskoeffizient μ_{en} berücksichtigt; μ_{en} (früher η') kann bei leichten Materialien bzw. niedrigen Elektronenenergien mit μ_{tr} gleichgesetzt werden.

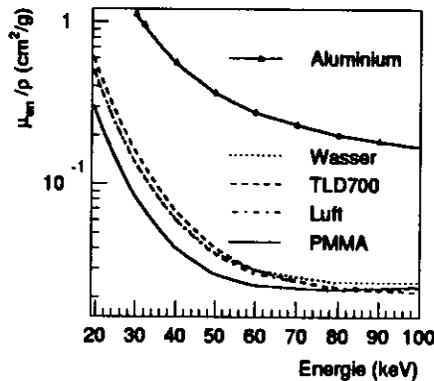


Abbildung 2.6: Massenabsorptionskoeffizienten pro Dichte μ_{en}/ρ für verschiedene Materialien nach [AIC95].

Die Dosis oder Dosisleistung an einem bestimmten Ort hängt von der Anzahl der vorhandenen Photonen pro Fläche ab. Diese Anzahl kann auch durch den Energiefluß pro Fläche ersetzt werden. Mit ψ wird der Energiefluß pro Fläche und Zeit bezeichnet.

Für die Änderung des Energieflusses durch die Energieabsorption im Material gilt dann nach Durchqueren der Strecke d :

$$\psi(d) = \psi_0 \cdot e^{-\mu_{en} \cdot d} \quad (2.10)$$

Die Differenz vor und nach Durchqueren des Materials ergibt dann die deponierte Energie; mit einfacher Entwicklung der Exponentialfunktion gilt (falls $\mu_{en} \cdot d \ll 1$):

$$\psi_0 - \psi(d) = \psi_0 \cdot \mu_{en} \cdot d \quad (2.11)$$

Dosis D und Dosisleistung \dot{D} beziehen sich nicht auf das Volumen, sondern auf die Masse. Die Dosis ist als Quotient aus deponierter Energie und bestrahlter Masse definiert, die Dosisleistung beschreibt die pro Zeit applizierte Dosis. Gleichung 2.11 wird durch die Massenflächenbelegung des jeweiligen Materials geteilt:

$$\dot{D} = \frac{\psi_0 \cdot \mu_{en} \cdot d}{m/A} = \psi_0 \cdot \frac{\mu_{en}}{\rho} \quad (2.12)$$

Tritt aufgrund der Bestrahlung eine merkliche Änderung der Strahlungsintensität ein, steigt der Anteil gestreuter Photonen, die zur Energiedeposition beitragen und daher berücksichtigt werden müssen. Ein gestreutes Photon durchquert das Material nicht in ursprünglicher Richtung, sondern in einer geänderten Richtung. Daher hat es im gleichen Volumen einen längeren Weg zurückzulegen, kann deshalb auch mehr Energie im Volumen deponieren. Je stärker der Anteil gestreuter Photonen am Gesamtfluß ist, desto größer wird diese zusätzliche Dosisdeposition.

Die Berücksichtigung dieser erhöhten Dosisdeposition geschieht durch den Aufbaufaktor B (*dose buildup factor*), der tabelliert ist oder in grafischer Form vorliegt ([Tur95], DIN 6804-1, DIN 6844-2/3) oder berechnet werden kann [AIC95] und dann als Faktor in die Intensität der Strahlung nach Durchqueren einer Schicht der Dicke d mit dem Schwächungskoeffizienten μ_{en} eingeht:

$$\dot{D} = B \cdot \psi_0 \cdot \frac{\mu_{en}}{\rho} \quad (2.13)$$

Der Aufbaufaktor ist immer größer oder gleich eins und muß für die rechnerische Dosimetrie mit Röntgenstrahlung in einigen Fällen berücksichtigt werden. Zu diesen Fällen zählt die Bestrahlung der Fasern in einem Stahltubus mit einer Wandstärke von 0,1 mm: Zur besseren Abschirmung der Fasern gegen den Umgebungssauerstoff wurden diese Fasern in eine dünne Stahlröhre eingebracht. Innerhalb dieses Tubus ließ sich keine experimentelle Dosimetrie durchführen. Durch die Röhre tritt aber ein spürbarer Anstieg an gestreuten Photonen auf, der die Berücksichtigung des Dosisaufbaus zur Bestimmung der Intensität innerhalb der Röhre notwendig macht.

2.2.2 Messung der Dosis mit handelsüblichen Dosimetern

Für die Dosimetrie stehen verschieden Dosimeter zur Verfügung: Thermolumineszenzdosimeter (TLD), Perspex, Radiachrome und Alanin.

Thermolumineszenzdosimeter

Thermolumineszenzdosimeter sind in unterschiedlichen Zusammensetzungen erhältlich; verwendet wurden TLD700 (LiF dotiert mit Mg bzw. Ti) oder TLD800 (Li₂B₄O₇). Durch die Bestrahlung entstehen im Material metastabile Zustände, welche durch Erwärmung zur Rekombination mit Lichtemission gebracht werden können [McK81]. In gewissen Dosisbereichen ist die Menge des ausgesendeten Lichtes proportional zur applizierten Dosis. Dieser Dosimetertyp, der aufgrund seiner hohen Empfindlichkeit hauptsächlich für die Personendosimetrie eingesetzt wird, liefert brauchbare Ergebnisse bis zu Dosen von 10 Gy (TLD700) bzw. 100 Gy (TLD800). Die TLD800 lassen sich zwar mit höheren Dosen bis zu einigen kGy bestrahlen, verlieren aber nach der Regeneration ihr reproduzierbares Verhalten.

Amber Perspex 3042D

Bei diesem kommerziellen Dosimetertyp der Firma Harwell Laboratory handelt es sich um rot gefärbtes Polymethylmethacrylat (PMMA), dessen optische Dichte A , die durch die Bestrahlung erhöht wird, im Spektralphotometer bei zwei Wellenlängen (603 und 651 nm) gemessen wird.

$$A = \log \frac{T}{100}$$

Dabei ist T die Transmission als Quotient aus den Lichtintensitäten vor und hinter der Probe in Prozent einer Probe mit der Dicke d . Die Abhängigkeit der optischen Dichte von der applizierten Dosis liegt in tabellierter Form vor; in den vorliegenden Untersuchungen wurden die Dosimeter wegen der höheren Empfindlichkeit bei der Wellenlänge $\lambda=603$ nm ausgewertet. Der Dosisbereich dieser Dosimeter reicht von 1 kGy bis 30 kGy; eine Interpolation der tabellierten Werte mit einem Polynom zweiten Grades liefert den folgenden Zusammenhang zwischen Dosis D und dem Quotienten aus optischer Dichte A und Probendicke d :

$$D = -0,254 + 2,02 \cdot \frac{A(603 \text{ nm})}{d} + 0,142 \cdot \left(\frac{A(603 \text{ nm})}{d} \right)^2 \quad (2.14)$$

Die Standardabweichung bei der Dosisbestimmung liegt bei ca. 4 % und die Unsicherheit in der Kalibrierung durch den Hersteller bei 5 %. Die Dicken der verwendeten Dosimeter lagen zwischen 2,6 und 3,2 mm.

Die Ermittlung der Dosisleistung ergab für Bestrahlungen am Probenort (BCF12) in der Kammer einen Wert von $\dot{D} = (56,7 \pm 4) \text{ Gy/h}$.

Dieser Dosimetertyp wurde regelmäßig bei Langzeitbestrahlungen zur Kontrolle der mittleren Dosisleistung der Röntgenröhre eingesetzt und es ergaben sich für die vorliegenden Untersuchungen Schwankungen im Bereich der Unsicherheiten dieser Dosimeter; die längsten Betrachtungszeiten betragen 120 Stunden.

Radiachrome

Dieser Dosimetertyp (Far West Techn. Inc., California) besteht aus dünnen Nylonfolien, denen ein blauer Farbstoff beigelegt ist. Verwendet wurden Folien mit der Bezeichnung FWT-60-00, Batch 5E4. Durch die Bestrahlung erhöht sich die Absorption über einen breiten Wellenlängenbereich; die stärkste Absorption entsteht im Wellenlängenbereich um 605 nm (Abb. 2.7), während bei kleinen Wellenlängen keine wesentliche Änderung der Transmission eintritt.

Linearität zwischen gemessener Absorption und applizierter Dosis besteht für die Auswertung bei 605 nm zwischen 1 und 10 kGy und bei 510 nm zwischen 10 und 100 kGy; eine Normierung auf die Transmission bei $\lambda = 430$ nm (Gleichung 2.15) erhöht die Genauigkeit der Auswertung [RH94], weil die Messung bei 430 nm mögliche Dickenschwankungen der Folien kompensiert. Als Absorption A' wird der Logarithmus des Quotienten der Transmissionen bei 430 und 605 nm der bestrahlten

Probe ohne Berücksichtigung der Dicke verwendet:

$$A' = \log \left(\frac{T(430 \text{ nm})}{T(605 \text{ nm})} \right) \quad (2.15)$$

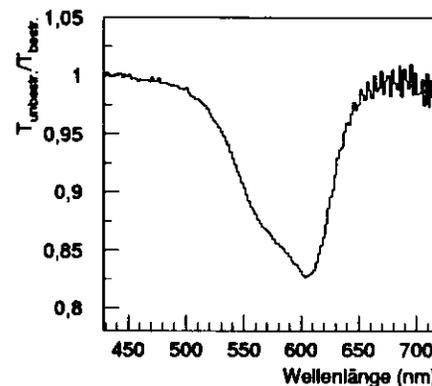


Abbildung 2.7: Transmissionsverlust der Radiachrome nach Bestrahlung mit einer Dosis von 950 Gy mit Röntgenstrahlung

Die Dicke der Folien beträgt nach Herstellerangaben $45 \mu\text{m}$; nach eigenen Kontrollmessungen wird diese Dicke auf $\pm 1 \mu\text{m}$ eingehalten. Mögliche Dickenschwankungen zwischen den einzelnen Folien haben daher nur sehr kleine Auswirkungen auf die Ergebnisse. Bei niedrigen Dosen ist die Auswertung der Folien bei beiden Wellenlängen sogar nachteilig [Bod97]. Auch die Messung bei 430 nm ist mit einer Unsicherheit behaftet, welche durch die eventuell erlangte Dickenkorrektur nicht kompensiert wird.

Ein Vorteil dieses Dosimetertyps liegt in seiner geringen Dicke. Da der Energieübertrag auf die Materie fast ausschließlich durch Sekundärelektronen geschieht (Abschnitt 2.2.1), kann die Materialzusammensetzung der Folien vernachlässigt werden. Voraussetzung dafür ist, daß die Reichweite der Sekundärelektronen größer als die Foliendicke ist. Das ist für Röntgenstrahlung nur bedingt der Fall; niederenergetische Elektronen haben in organischen Materialien wie Polystyrol nur eine geringe Reichweite, die für Elektronen mit einer Energie unterhalb 60 keV kleiner als die Foliendicke ist (Abb. 2.5). Ein zweiter Vorteil liegt in der geringen Abmessung der Folien ($10 \times 10 \text{ mm}^2$), die es ermöglicht, sie auch an engen Orten unterzubringen.

Nachteile bestehen in der Lichtempfindlichkeit; werden die Folien für die Dauer von fünf Minuten dem Tageslicht ausgesetzt, äußert sich das in einer Absorption, die einer Bestrahlung mit mit einer Dosis von 500 Gy entspricht. Außerdem zeigen die Folien eine Abnahme der Absorption nach der Bestrahlung von einigen Prozent in einer Woche [Joh96].

Die Reproduzierbarkeit für die Bestimmung einer Dosis ist bei kleinen Dosen bis etwa 2 kGy nicht zufriedenstellend; für größere Dosen wird eine Standardabweichung von etwa 5 % erreicht (Abb. 2.8). Für Dosen bis zu 5 kGy wurden stärkere Schwankungen beobachtet [Bod97], die einen Einsatz bis zu dieser Dosis nur mit größerer

Unsicherheit zulassen. Zur Kontrolle der Dosisleistung der Röntgenröhre eignen sich diese Dosimeter, wenn sie auf der Probenkammer im Röntgenschrank installiert werden; die applizierte Dosis liegt wegen der geringeren Entfernung zur Röntgenröhre im günstigen Dosisbereich oberhalb von 5 kGy und die einfache Auswertung, die keine Messung der Probendicke benötigt, läßt eine routinemäßige Installation dieser Dosimeter im Bestrahlungsraum zu.

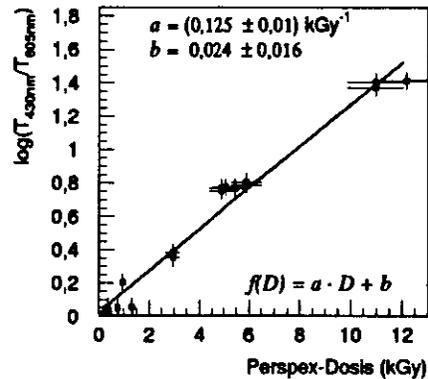


Abbildung 2.8: Logarithmus des Transmissionsverlustes der Radiachrome nach Bestrahlung mit Röntgenstrahlung mit Dosen von 200 Gy bis 12 kGy

Alanin

Das verwendete Alanin besteht zu 67% aus DL- α -Alanin ($\text{CH}(\text{NH}_2)\text{-COOH}$), in dem sich bei Bestrahlung stabile Radikale bilden, die sich mit der Elektronenspinresonanzmessung (ESR) nachweisen lassen. Der Dosisbereich liegt zwischen 10 und 10^5 Gy. Vorteile der Alanin-Dosimetrie liegen im großen Dosisbereich und der Stabilität der gebildeten Radikale [Dan96]. Allerdings erfordert diese Dosimetrie eine Kalibration des verwendeten ESR-Gerätes.

2.2.3 Rechnerische Ermittlung der Dosis

Wie schon im Abschnitt 2.1.2 erwähnt, wird für den rechnerischen Umgang mit der Röntgenstrahlung das Spektrum in 100 Energieabschnitte eingeteilt. Dann muß für jede Energie gesondert die Wechselwirkung mit Materie berechnet werden; aus der Intensität jeder einzelnen Energie läßt sich so das Gesamtverhalten der Röntgenstrahlung bestimmen.

Zur Berechnung der Dosisleistung erfolgt zunächst eine Anpassung des theoretischen Spektrums der Bremsstrahlung und der charakteristischen Strahlung an die Geometrie der verwendeten Röntgenröhre, die mit mit einem 1 mm dicken Berylliumfenster und einem 2 mm dicken Aluminiumfilter ausgestattet ist. Außerdem wird

eine 20 cm dicke Luftschicht¹ zwischen Röntgenröhre und zu bestrahlender Probe berücksichtigt.

Damit ergibt sich für den Photonenfluß ein Verlauf, wie er in Abb. 2.2.3 gezeigt ist. Für bestimmte Fälle müssen aber auch noch die Sekundärelektronen berücksichtigt werden, die im Filtermaterial der Röntgenröhre ausgelöst werden. Diese Elektronen haben in Luft nach Gleichung 2.9 bei 100 keV eine mittlere Reichweite von 11 cm, können daher bei kleinen Abständen die Bestrahlungsgegenstände noch erreichen. Die Reichweite der Elektronen in den untersuchten Materialien mit einer Dichte von mindestens 1 g/cm^3 ist jedoch so klein, daß sie nur für die Bestrahlung sehr dünner Objekte (z. B. Radiachrome) eine Rolle spielen.

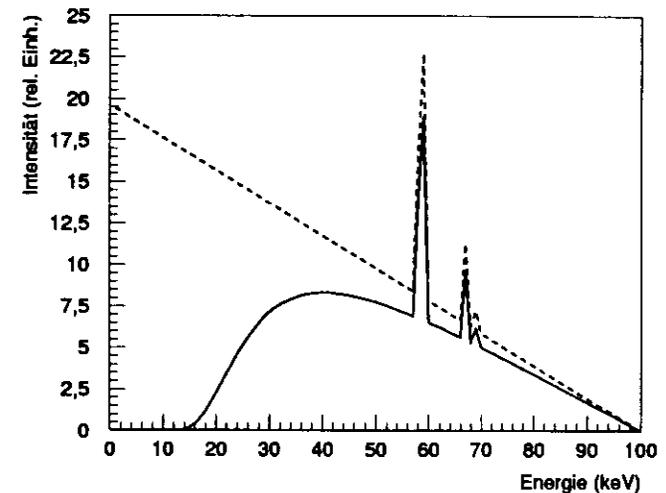


Abbildung 2.9: Berechnetes Photonenpektrum hinter der Eigenfilterung durch die Röntgenröhre und 20 cm Luft (durchgezogen) bzw. ohne Filterung (gestrichelt)

Eine Schwierigkeit besteht in der absoluten Normierung der Intensität; Gleichung 2.7 liefert die Gesamtintensität über alle Raumwinkel. Da die Abstrahlung der Röntgenstrahlung nahezu isotrop erfolgt (Abschnitt 2.1.3), kann die Gesamtleistung der Röntgenröhre gleichmäßig auf den abgestrahlten Winkelbereich (halbe Kugel) verteilt werden. Damit ergibt sich für die Berechnung eine Leistung von 100 mW/cm^2 in 3 cm Abstand vom Fokus, was geometrisch der Oberfläche der Röhrenfilterung entspricht. Zugrunde liegt hier die Gesamtleistung nach Formel 2.1 mit Berücksichtigung der charakteristischen Strahlung bei einer Beschleunigungsspannung von 100 kV und einem Strom von 15 mA.

¹ Die Zusammensetzung der Luft entspricht der in [FR90] mit Berücksichtigung von Stickstoff, Sauerstoff, Argon und Kohlendioxid und einem Wassergehalt von 7 g pro m^3 .

Für die Durchführung der Berechnungen wurde das Programm PHOTCOEF[®] (s. Abschnitt A.1) eingesetzt. Die Abweichungen von den Literaturwerten für Massenschwächungskoeffizienten und Massenabsorptionskoeffizienten liegen zwischen 0,3 % (um 80 keV Photonenenergie) und 2 % (um 10 keV Photonenenergie). Die berechneten Dosisleistungen für Bestrahlungen in Luft ergeben gegenüber der Messung der Dosis mit Dosimetern (Perspex) eine um den Faktor 2 erhöhte Dosisleistung. Da der Berechnung der Leistung der Röntgenröhre Vereinfachungen vorausgingen, ist dieses Ergebnis akzeptabel.

Um auf korrekte Berechnungen zu kommen, wird die abgestrahlte Leistung der Röntgenröhre so korrigiert, daß die gemessene Dosisleistung berechnet wird.

Mit dieser Leistung wird Gleichung 2.12 mit Berücksichtigung des Abstandes d zwischen der Anode und der bestrahlten Probe mit 1 mm zusätzlicher Aluminiumfiltration durch den Kammerdeckel für bestrahltes PMMA zu:

$$\dot{D}_{\text{PMMA}}(d) = 1,29 \frac{\text{mW}}{\text{cm}^3} \cdot \left(\frac{1 \text{ cm}}{d}\right)^2, \quad (2.16)$$

wenn keine deutliche Schwächung der Röntgenstrahlung auftritt. Da diese Voraussetzung nicht erfüllt ist, muß für jede dünne Schicht die Schwächung der Röntgenstrahlung neu berechnet werden und als Ausgangsleistung in die Gleichung 2.16 eingesetzt werden. Die Berechnung der Schwächung erfolgt mit dem Massenschwächungskoeffizienten μ (S. 7).

Die berechneten Dosisleistungen für Bestrahlungen in Luft und in Argon sind in Tabelle 2.2 angegeben.

Fasertyp	Atmosphäre	Dosisleistung Gy·h ⁻¹
BCF12	Argon	41,9
BCF12(Qu)	Argon	29,6
BCF12	Luft	41,9

Tabelle 2.2: Dosisleistung der Röntgenröhre (100 kV, 15 mA) bei Bestrahlung von Polystyrol in Argon und in Luft innerhalb der Probenkammer in 25 cm Abstand vom Fokus mit 1 mm Beryllium- und 2 mm Aluminiumfilter. „BCF12(Qu)“ bezeichnet Proben im Stahlrohr mit 0,1 mm Wandstärke.

2.2.4 Vergleich verschiedener Dosimeter

Der bestimmende Wechselwirkungsprozess zwischen den Photonen der Röntgenstrahlung und den bestrahlten Materialien sind der Photo- und der Comptoneffekt. Daraus ergibt sich eine starke Abhängigkeit des Massenabsorptionskoeffizienten μ_{en} von der Ordnungszahl des absorbierenden Stoffes. Für die verwendeten Dosimetertypen läßt sich bei bekannter chemischer Zusammensetzung die relative Dosisdeposition

für das theoretische Röntgenspektrum berechnen; die erhaltenen Werte sind in Tabelle 2.3 angegeben.

$D_{\text{TLD700}} : D_{\text{TLD800}}$	1,39
$D_{\text{TLD800}} : D_{\text{PMMA}}$	1,61
$D_{\text{TLD700}} : D_{\text{PMMA}}$	2,24
$D_{\text{PMMA}} : D_{\text{Polystyrol}}$	1,35

Tabelle 2.3: Dosisdepositionen in unterschiedlichen Materialien für Röntgenstrahlung (100 kV, 1 mm Be- und 2 mm Al-Filter) bei Bestrahlung in Luft

In gleicher Weise müssen die bestrahlten Materialien in die Dosisbestimmung einbezogen werden, wenn keine Dosimeter aus demselben Material zur Verfügung stehen. Deshalb ist in Tabelle 2.3 der Quotient aus absorbierten Dosen in PMMA und in Polystyrol mit angegeben. Die Dosisdeposition ist in PMMA deutlich größer als in Polystyrol, weil aufgrund der niedrigen Quantenenergien der Röntgenstrahlung Photo- und Comptoneffekt die Wechselwirkung mit Materie bestimmen. Insbesondere der Photoeffekt ist stark von der Ordnungszahl des Absorbers abhängig. Die Ordnungszahl ist für PMMA durch den Sauerstoffanteil effektiv größer als für Polystyrol.

Kapitel 3

Einfluß auf die optischen Eigenschaften

3.1 Eigenschaften der untersuchten Szintillatoren

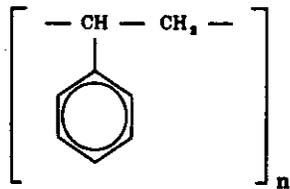


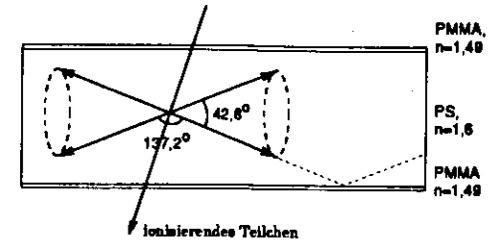
Abbildung 3.1: Strukturformel von Polystyrol (ohne Endglieder)

Viele szintillierende Fasern werden mit einer schützenden Hülle („Cladding“) aus Polymethylmethacrylat (PMMA) ausgestattet. Dies dient einer größeren mechanischen Belastbarkeit und reduziert Lichtverluste durch Beschädigungen der Oberfläche. Innerhalb einer Faser wird das Licht durch Totalreflexion in der Faser gehalten. Totalreflexion erfolgt ab einem Einfallswinkel von $68,6^\circ$. 12 % des Szintillationslichtes kann bei isotroper Emission von der Faser transportiert werden, wenn der Teil des Szintillationslichtes, der an der Grenzschicht Cladding-Luft totalreflektiert wird, unberücksichtigt bleibt (Abb. 3.2). Im Experiment wird dieses Mantellicht oft aktiv unterdrückt, indem Teile der Fasern von außen geschwärzt werden [GRO95]. Mögliche Beschädigungen mechanischer oder strahlungsbedingter Herkunft der Faserhülle haben dann keinen Einfluß auf das Transmissionsverhalten der Fasern.

Der Durchmesser der untersuchten BCF12-Fasern beträgt 1 mm. Die Dicke des

Als Basismaterial vieler Szintillatoren dient Polystyrol. Dabei handelt es sich um einen transparenten Kunststoff, der für sichtbares Licht durchlässig ist. Ionisierende Strahlung löst in diesem Material Szintillationsprozesse aus, die Licht im Wellenlängenbereich um 330 nm erzeugen. Die Intensität an Szintillationslicht kann durch den Zusatz von Farbstoffen erhöht werden; diese liefern in der Regel blaues Licht. Um die Empfindlichkeit der Photomultiplier besser auszunutzen, werden häufig Farbstoffe verwendet, die blaues Licht absorbieren und grünes bis rotes Licht emittieren. Ein weiterer Vorteil bei der Verwendung solcher Wellenlängenschieber liegt in der niedrigen Selbstabsorption des Szintillators für das langwellige Licht. In der vorliegenden Arbeit wurden zwei Szintillatoren untersucht: BCF12 von der Firma Bicron und SCSF81(Y7) von der Firma Kuraray.

Abbildung 3.2: Der Akzeptanzwinkel einer Polystyrolfaser mit PMMA-Cladding beträgt durch die Totalreflexion bedingt $42,8^\circ$.



Claddings beträgt dabei 3 % des Faserdurchmessers. Das Fluoreszenzlicht reicht von 400 nm bis 550 nm mit einem Maximum um 430 nm (Abb. A.2, S. 89). Die chemische Zusammensetzung der eingesetzten Farbstoffe ist nicht bekannt.

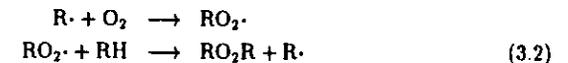
3.2 Einfluß der Bestrahlung auf die verwendeten Polymere

Neben der Erzeugung von Fluoreszenzlicht wird durch die ionisierende Strahlung ein Szintillator auch geschädigt: Rekombinationsprozesse hinterlassen angeregte Moleküle, welche die Entstehung von Radikalen im Material verursachen, die ihrerseits sichtbares Licht und damit auch das Fluoreszenzlicht absorbieren können. Unabhängig von den exakten chemischen Abläufen lassen sich verschiedene Reaktionsmechanismen [Clo88] feststellen, die in der Entwicklung des Absorptionsverhaltens eines Szintillators wiedergefunden werden.

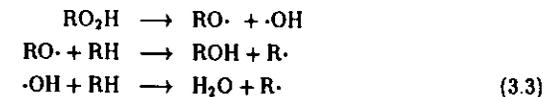
Radikalbildung (Initiation):



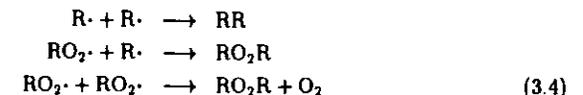
Übertragungsreaktionen (Propagation):



Kettenverzweigungen:



Mögliche Ausheilreaktionen sind dann (Terminierung):



Eine wichtige Rolle bei vielen dieser Reaktionen spielt der Sauerstoff. Er kann einerseits den Abbau der Radikale bewirken, andererseits aber auch durch Übertragungsreaktionen die Zahl der Radikale erhöhen. Die relativen Anteile der einzelnen Reaktionen hängt von den äußeren Bedingungen ab, denen der Szintillator ausgesetzt ist. Dazu zählen die Sauerstoffkonzentration, die Temperatur, die Dosisleistung und die verabreichte Dosis sowie die Probengeometrie. Die Probengeometrie spielt insbesondere in den Fällen eine große Rolle, in denen Sauerstoff beteiligt ist. Durch die Bestrahlung wird der Sauerstoff im Polystyrol gebunden; von außen nachdiffundierender Sauerstoff ist dann an der Probenoberfläche in einer größeren Konzentration als in der Probenmitte anzutreffen. Daraus resultieren Inhomogenitäten bezüglich der Verteilung der Absorptionszentren im Szintillator, die eine genaue kinetische Analyse verhindern.

Grundsätzlich können auch die im Szintillator eingesetzten Farbstoffe chemische Veränderungen erfahren. Das äußert sich in einem veränderten Fluoreszenz- und Transmissionsverhalten. Eine Zerstörung von Farbstoffen führt zu einer Zunahme der Transmission; bei sehr niedrigen Farbstoffkonzentrationen kann durch die Zerstörung der Farbstoffe eine Reduktion der Fluoreszenzlichtausbeute bewirkt werden. Als weitere Folge ist die Ausbildung neuer Absorptionszentren mit einer Abnahme der Transmissionsfähigkeit möglich. Die Reaktionsmechanismen ähneln denen der Polystyrolmatrix – es werden Reaktionen beobachtet, die in ähnlicher Weise wie die oben genannten von den äußeren Bedingungen wie Atmosphäre oder Temperatur abhängen.

3.3 Definition des Strahlenschadens

Die Untersuchung der Fasern geschieht durch die Messung der Änderung des Lichttransportes durch die Fasern während und nach der Bestrahlung. Für die Intensität des Lichtes, das eine Faser durchquert, gilt innerhalb dieser Faser das Lambertsche Absorptionsgesetz:

$$I(\lambda, l) = I_0 \cdot e^{-\mu(\lambda, t) \cdot l} \quad (3.5)$$

I bezeichnet die Intensität innerhalb der Faser, I_0 die Intensität am Ende einer nicht absorbierenden Faser, μ die Absorptionskonstante (oder Absorptionskoeffizient), welche durch die Bestrahlung von der Zeit t abhängt, und l die Länge der Faser.

Im Meßaufbau treten allerdings Reflexionen an der Front- und Rückfläche der Faser auf. Diese vermindern die Intensität um einen bestimmten Faktor, der ausschließlich durch die Brechungsindizes $n(\lambda)$ der beteiligten Materialien (hier: Übergang Luft \leftrightarrow Polystyrol) bestimmt ist. Die real gemessene Transmission T_0 einer nicht absorbierenden Faser beträgt [Bus92]:

$$T_0(\lambda) = \frac{1 - \left(\frac{n(\lambda)-1}{n(\lambda)+1}\right)^2}{1 + \left(\frac{n(\lambda)-1}{n(\lambda)+1}\right)^2} \quad (3.6)$$

An allen anderen optischen Übergängen treten Reflexionsverluste nach demselben Schema auf. Bei der Bestrahlung kann davon ausgegangen werden, daß sich die Brechungsindizes der beteiligten Materialien nicht ändern, weshalb die relativen Reflexionsverluste an den Oberflächen unverändert bleiben. Deshalb bewirken alle optischen Übergänge insgesamt eine Reduktion der Intensitäten um einen konstanten Faktor, der sich während der Messungen und Bestrahlungen nicht ändert.

Wird nun die Intensität zu verschiedenen Zeitpunkten (der Bestrahlung) gemessen, läßt sich durch Division von Gleichung 3.5 für die beiden Zeitpunkte die Änderung der Absorptionskonstante μ bestimmen. Als durch Strahlung induzierte Absorption, kurz Strahlenschaden, (Abb. 3.3) wird dann der folgende Ausdruck definiert:

$$\Delta\mu(\lambda, t) = \mu_{\text{irr}}(\lambda, t) - \mu_{\text{ini}}(\lambda) = \frac{1}{l} \cdot \ln \left(\frac{I_{\text{irr}}(\lambda, t)}{I_{\text{ini}}(\lambda)} \right) \quad (3.7)$$

wobei $I_{\text{ini}}(\lambda)$ und $I_{\text{irr}}(\lambda)$ die gemessenen Intensitäten bei unbestrahlter und bestrahlter Faser bezeichnen. Die vollständige Absorptionsentwicklung einer Faser während und nach der Bestrahlung zeigt Abbildung 3.4.

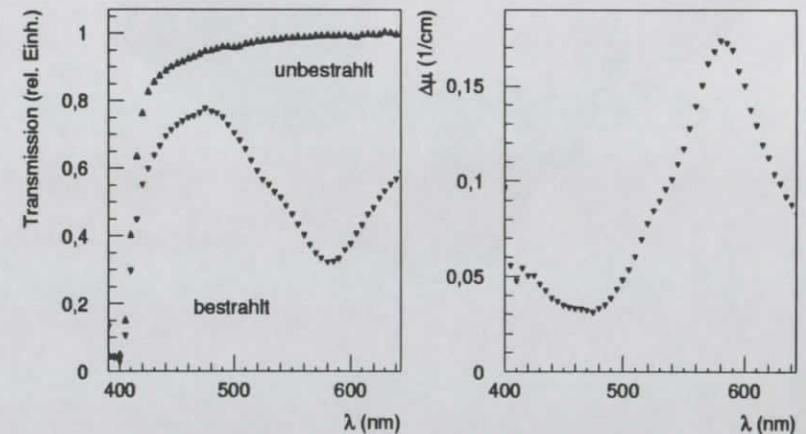


Abbildung 3.3: Die linke Abbildung zeigt die Reintransmission einer 6,5 cm langen BCF12-Faser im unbestrahlten Zustand und nach Bestrahlung in Argon mit einer Dosis von 2,5 kGy. Rechts ist die durch die Bestrahlung induzierte zusätzliche Absorption dargestellt.

Neben der Absorption wird oft die Extinktion als charakteristische Größe für die optische Beurteilung transparenter Medien angegeben. Dabei wird zwischen dekadischer und natürlicher Extinktion unterschieden. Grundlage der Definition bildet der wellenlängenabhängige Reintransmissionsgrad ϑ_λ , welcher als die von Reflexionen an

den Oberflächen bereinigte Transmission definiert ist [Mey73]. Die dekadische Extinktion E_λ (bzw. natürliche Extinktion $E_{n\lambda}$) ist als der dekadische (bzw. natürliche) Logarithmus des Reintransmissionsgrades für Licht der Wellenlänge λ definiert:

$$E_\lambda = \lg\left(\frac{1}{\vartheta_\lambda}\right)$$

$$E_{n\lambda} = \ln\left(\frac{1}{\vartheta_\lambda}\right)$$

$$E_{n\lambda} = 2,30 \cdot E_\lambda .$$

Die dekadische Extinktion wird häufig einfach als Extinktion bezeichnet. Der Quotient $E_{n\lambda}/l = m_{n\lambda}$ mit l als Schichtdicke des absorbierenden Mediums wird als natürlicher Extinktionsmodul bezeichnet und entspricht der oben definierten Absorption $\mu(\lambda)$ (Gl. 3.5); der Quotient $E_\lambda/l = m_\lambda$ ergibt den dekadischen Extinktionsmodul m_λ . Für Lösungen von absorbierenden Stoffen in nicht absorbierenden Lösungsmitteln wird der dekadische oder natürliche Extinktionskoeffizient¹ ϵ_λ oder $\epsilon_{n\lambda}$ als Quotient aus Extinktionsmodul und molarer Konzentration angegeben. Dieser ist in der Regel konzentrationsunabhängig und läßt damit eine Konzentrationsbestimmung bekannter gelöster Stoffe zu. Beim optischen Verhalten von Szintillatoren ist aber die absolute Absorption entscheidend, unabhängig von der Konzentration der absorbierenden Moleküle; damit gibt der Extinktionsmodul bzw. die Absorptionskonstante die anschaulichste Information über das optische Verhalten der untersuchten Materialien.

¹ Als Extinktionskoeffizient wird auch das Produkt aus Brechungsindex n und Absorptionsindex κ angegeben; der Zusammenhang mit der Absorptionskonstante ist durch die Gleichung $\kappa = \mu \cdot \lambda / (4\pi)$ gegeben.

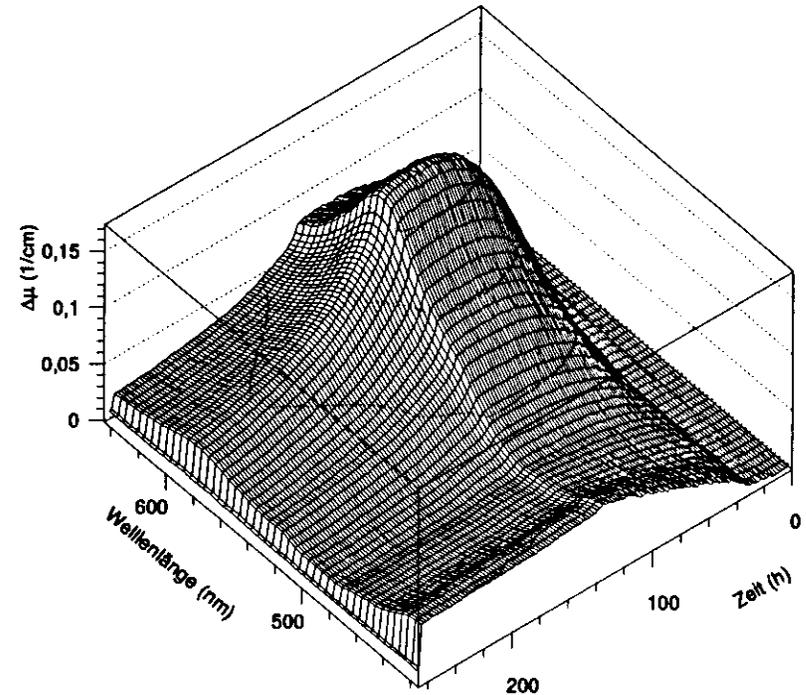


Abbildung 3.4: Absorptionsentwicklung einer in Argon bestrahlten BCF12-Faser über einen Zeitraum von 270 Stunden im Wellenlängenbereich von 400 bis 650 nm.

Kapitel 4

Die Experimente

4.1 Bestrahlungen mit der Röntgenröhre

Da die Bestrahlungseffekte insbesondere während der Bestrahlung gemessen werden sollen, mußte eine Bestrahlungseinrichtung aufgebaut werden, die auch während der Bestrahlungszeit ein Arbeiten in unmittelbarer Umgebung ermöglicht. Das gilt zum einen für die Anwesenheit im Labor zur Überwachung der Meßabläufe. Aus diesem Grunde sind Grenzwerte bezüglich der Strahlenbelastung im Labor einzuhalten. Zum anderen darf die computergestützte Steuerung der Meßabläufe mit der Datennahme nicht durch die Bestrahlungseinrichtung gestört werden.

Die Wahl fiel auf eine Röntgenröhre, die in einen Bleischrank eingebaut wurde. Diese Einrichtung erfüllt die oben genannten Voraussetzungen und bietet noch weitere Vorteile. Sie ermöglicht ein präzises Ein- und Ausschalten der Bestrahlung und damit eine gute Kontrolle über den Bestrahlungsverlauf. Desweiteren sind die Anforderungen bezüglich der Abschirmung für Röntgenstrahlung besonders einfach zu erfüllen. Eine aufwendige Abschirmung, wie sie für radioaktive Präparate mit vergleichbarer Dosisleistung notwendig wäre, entfällt. Außerdem wird mit einem vertretbaren finanziellen Aufwand eine Bestrahlungsquelle mit einer frei verfügbaren Meßzeit geschaffen.

4.1.1 Aufbau der Bestrahlungseinrichtung

Die Bestrahlung wurde mit einer Röntgenröhre vom Typ MCN 101 der Firma Philips durchgeführt. Diese Röhre ist in einem Bleischrank eingebaut, der für eine Abschirmung der Röhre in alle Richtungen sorgt, und erfüllt damit die Anforderungen für ein Vollschutzgerät.

Den Aufbau der Bestrahlungseinrichtung zeigt Abb. 4.2. Die Röntgenröhre, deren Strahlrichtung senkrecht nach unten angeordnet ist, wird mit einer Spannung von 100 kV und einem Strom von 15 mA betrieben. Der Abstand der Röhre vom Boden des Bleischrankes beträgt 40 cm; die untersuchten Fasern wurden in einer Entfernung von 30 cm bestrahlt. Diese Entfernung bietet einen guten Kompromiß zwischen hoher Dosisleistung und homogener Bestrahlung.

Zur Variation der Dosisleistung wurde eine rotierende Scheibe zwischen Röntgenröhre und Bestrahlungsobjekt angebracht. Dieser Rotator besteht aus zwei Flügelrädern, die sich gegeneinander verschieben lassen. Durch diese Verschiebung kann die Weite der Durchlaßöffnungen stufenlos von 0 % bis 50 % Öffnungsanteil gestellt werden. Die Rotation dieser Flügelräder führt zu einer gepulsten Bestrahlung, wobei das Verhältnis von Bestrahlungszeit zu Abschirmzeit verändert wird. Die Frequenz der Bestrahlung beträgt etwa 24 Hertz. Der Vorteil bei dieser Methode liegt in der einfachen Dosisbestimmung, da durch den Rotator während der Abschirmung die Röntgenstrahlung vollständig absorbiert wird (3 mm Blei und 1 mm Stahl) und deshalb das Spektrum der Röntgenstrahlung nicht beeinflusst wird. Eine solche Beeinflussung, wie sie etwa durch eine Abschirmung mit Aluminium verursacht würde, hätte zur Folge, daß die Dosimetrie für jede Abschirmung neu durchgeführt werden müßte. Damit wäre eine größere Unsicherheit in der Dosisangabe beim Vergleich unterschiedlicher Dosisleistungen verbunden.

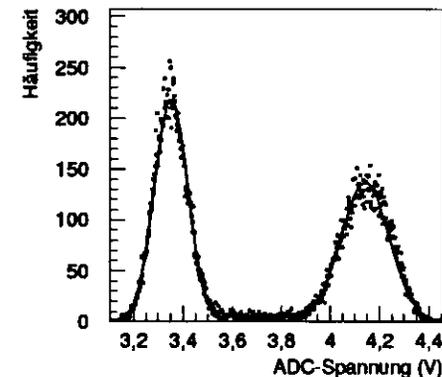


Abbildung 4.1: Spektrum der am ADC gemessenen Spannung während einer Bestrahlung mit laufendem Rotator mit 50 % Abdeckung. Insgesamt wurden 30000 Meßpunkte aufgenommen. Bei 3,3 V (15680 Einträge) liegt das Signal des Meßlichtes und bei 4,1 V (14320 Einträge) das gemeinsame Signale von Meßlicht und Fluoreszenz. Die ungleiche Aufteilung der Einträge kommt durch die fehlende Synchronisation Rotator - Datennahme zustande.

Die Bestrahlung mit der Röntgenröhre erzeugt in der Faser Fluoreszenzlicht. Dieses muß als Untergrundsignal bei der Transmissionsmessung vom Signal der Lichtquelle (Abb. 4.4) abgezogen werden. Beim Betrieb des Rotators erfolgt eine fraktionierte Bestrahlung, die zu zwei Signalen am ADC führt. Ist die Bestrahlung abgeschirmt, wird nur das Licht der Lampe gemessen; ist die Abschirmung offen, wird zusätzlich das Fluoreszenzlicht registriert. Die Datenaufnahme erfolgt mit einer Frequenz von 30 kHz; die Aufnahme von den üblicherweise verwendeten 30000 Meßpunkten dauert deshalb eine Sekunde. Während dieser Zeit wird die Faser 24 mal bestrahlt. Berücksichtigt man, daß die Datennahme ohne Synchronisation zur Stellung des Rotators beginnt, ergibt sich eine Unsicherheit in der Bestrahlungszeit während einer Meßphase. Diese Unsicherheit ist am größten, wenn eine ungerade Anzahl an Abdeckungen und Bestrahlungen auftritt. Damit ergibt sich eine Unsicherheit von maximal 1/24 oder 4,2 % des gemessenen Fluoreszenzsignals. Der Anteil des Fluoreszenzsignals am Gesamtsignal hängt außer von der Wellenlänge und der Fluoreszenzintensität der Faser auch von der Öffnung des Rotators ab. Wird der Rotator weiter geschlossen, sinkt der relative Fluoreszenzlichtanteil und damit auch die Unsicherheit weiter

ab. Bei maximaler Öffnung mit 50 % Dosisleistung beträgt der Fluoreszenzlichtanteil in der Regel 25-50 % vom Gesamtsignal inklusive Meßlicht und führt zu einer Vergrößerung des Rauschens um 20-100 % bei der Bestimmung der strahlungsinduzierten Absorption.

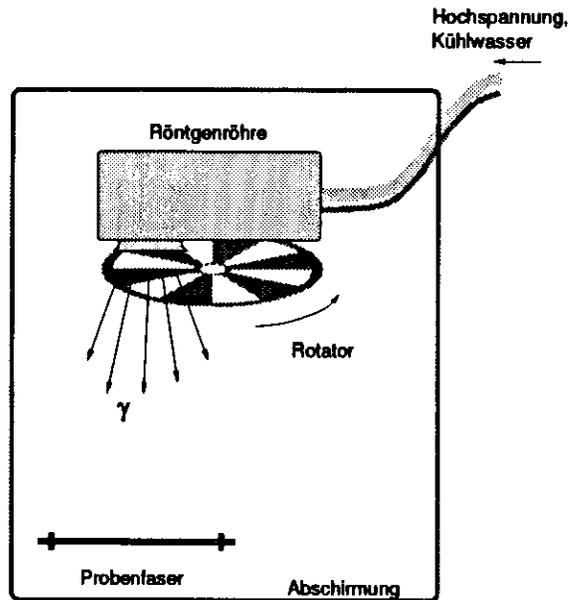


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau der Bestahlungseinrichtung

4.1.2 Flächendosisverteilung der Röntgenquelle

Aufgrund der Abschattungen durch die Filterhalterung ergibt sich in den linken Ecken einer 100 cm² großen Fläche (Abb. 4.3) ein starker Abfall der gemessenen Dosis. Die Winkelverteilung der Röntgenstrahlung (Abschnitt 2.1.3) verursacht den wesentlich kleineren Anteil der Winkelverteilung; bei der vorliegenden Röhre mit einem Anodenwinkel von 22° wird eine deutliche Abnahme in der Dosisleistung in 32 cm Entfernung vom Fokus erst ab einer Verschiebung von etwa 10 cm erwartet. Vielmehr wird der Abfall in den Ecken durch die Selbstabsorption der Röhre verursacht; im Röhregehäuse ist ein Fenster mit nur schwacher Filterung eingearbeitet, während das übrige Gehäuse eine starke Absorption aufweist.

Die Variation im nicht verschatteten Bereich setzt sich aus drei Effekten zusammen. Zum ersten steigt mit der Verschiebung auf der Ebene der Abstand zum Fokus und damit die Aufweitung der Strahlung. Zum zweiten müssen die nicht senkrechten

Strahlen eine etwas dickere Filterung durchqueren. Und zum dritten geht die oben genannte Winkelverteilung der Bremsstrahlung ein.

In 30 cm Abstand vom Fokus können Proben mit einer Größe von 5x5 cm² mit 5 % Schwankung bestrahlt werden (Abb. 4.3).

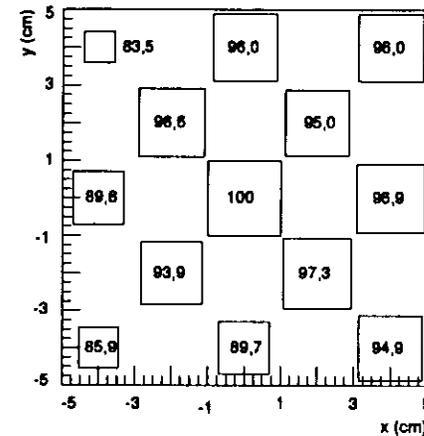


Abbildung 4.3: Relative Dosisverteilung unter der Röntgenröhre auf einer 10x10 cm² großen Fläche in 32 cm Abstand vom Fokus; der Fokus befindet sich senkrecht über dem Punkt (0,0) in der Darstellung

4.2 Messung des Strahlenschadens

4.2.1 Aufbau der Meßapparatur

Den prinzipiellen Aufbau der Meßapparatur zeigt Abb. 4.4. Die Xenonlampe erzeugt Licht mit einem breiten Wellenlängenspektrum. Dieses wird mit einem Monochromator selektiert und mit Quarzfasern durch die Probe hindurch auf einen Photomultiplier transportiert. Dessen Signal wird über einen Analog-Digital-Wandler (ADC) mit einem IBM-kompatiblen Personal-Computer aufgenommen. Zur Überwachung der Stabilität der Messung ist ein zweiter Lichtweg installiert, in den bei Bedarf eine Referenzfaser eingebracht werden kann. Damit werden Schwankungen in der Meßapparatur (z. B. der Lichtquelle) erfaßt; die Installation einer Referenzfaser ist sinnvoll, wenn das Licht aus dem Monochromator seinerseits zu einer Beeinflussung der Absorption in der untersuchten Faser beiträgt. Eine solche Beeinflussung wird in geringem Maße für alle Fasern beobachtet und beschränkt in erster Linie die Langzeitstabilität der Meßapparatur, wenn keine Referenzfaser benutzt wird (s. Abschnitt 4.2.2).

Die gemessenen Intensitäten im Referenzkanal $I_{ini}^{ref}(\lambda)$ vor und $I_{irr}^{ref}(\lambda)$ während der Bestrahlung führen zu einem Korrekturfaktor, der in die Berechnung des Strahlenschadens nach Gleichung 3.7 eingeht:

$$\Delta\mu(\lambda) = \frac{1}{I} \cdot \ln \left(\frac{I_{irr}(\lambda)}{I_{ini}(\lambda)} \cdot \frac{I_{ini}^{ref}(\lambda)}{I_{irr}^{ref}(\lambda)} \right) \quad (4.1)$$

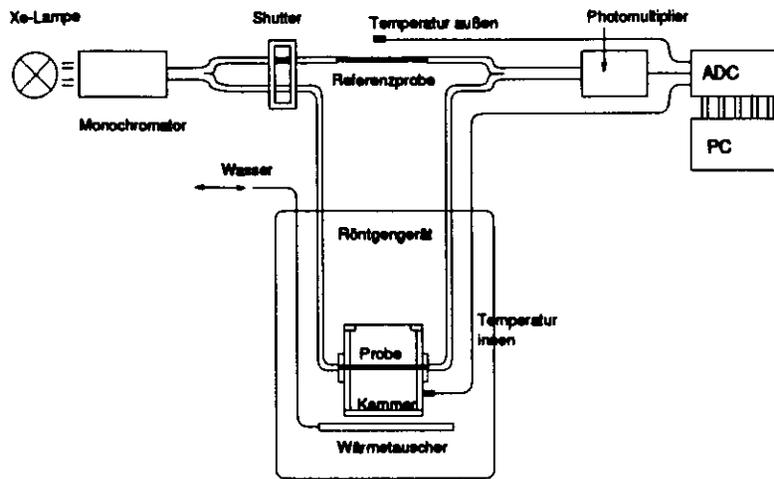


Abbildung 4.4: Schematischer Aufbau der Meßapparatur zur Bestimmung des Strahlenschadens nach Gleichung 4.1.

Die gemessenen Intensitäten sind die Intensitäten, die von der Lichtquelle am Photomultiplier registriert werden. Um mögliche Lichteinkopplungen von außen in die Meßapparatur zu kompensieren, werden für beide Meßkanäle Messungen bei abgedeckter Lichtquelle („0-Signal“) durchgeführt. Diese Meßwerte werden von den Werten bei geöffneter Lichtquelle abgezogen, um die für die Transmissionsbestimmung notwendigen Werte zu erhalten. Neben Lichteinkopplungen von außen werden bei geschlossener Lichtquelle auch Intensitäten registriert, die innerhalb des Meßaufbaus entstehen können. Dazu zählt das Fluoreszenzlicht, das während der Bestrahlung in szintillierenden Fasern induziert wird. Das gleiche gilt für Cherenkov-Strahlung, die beim Durchgang schneller Teilchen durch Materie entsteht. Diese tritt allerdings nur bei Bestrahlung mit sehr hohen Quantenenergien auf, wenn die Teilchengeschwindigkeit höher als die Lichtgeschwindigkeit im Medium ist.

Um die Umgebungsatmosphäre der Faser zu kontrollieren, wurde eine Vakuumkammer im Röntgenschränk eingesetzt, in welcher die Faser während der Untersuchung montiert wird. Die optische Ankopplung der Kammer erfolgt über Quarzfenster; ein 1 mm dickes Aluminiumfenster schließt die Kammer nach oben in Richtung der Röntgenröhre ab. Eine Turbomolekularpumpe und Druckflaschen mit Sauerstoff bzw. Argon befinden sich außerhalb des Bleischrankes und ermöglichen jederzeit die Änderung der Atmosphäre in der Vakuumkammer.

Der größte Teil der in der Röntgenröhre umgesetzten Energie wird als Wärme abgegeben (Abschnitt 2.1.1), weshalb die Röntgenröhre mit einer Wasserkühlung versehen ist. Dennoch führt die Bestrahlung zu einer Erwärmung des Innenraumes der Röntgeneinrichtung; deshalb wurde zusätzlich ein Wärmetauscher unter der Pro-

be angebracht, der für eine konstante Temperatur während der gesamten Meßphase sorgt. Die Temperatur der Vakuumkammer und der Referenzprobe wurden während der gesamten Meßzeit überwacht.

4.2.2 Eigenschaften der Meßapparatur

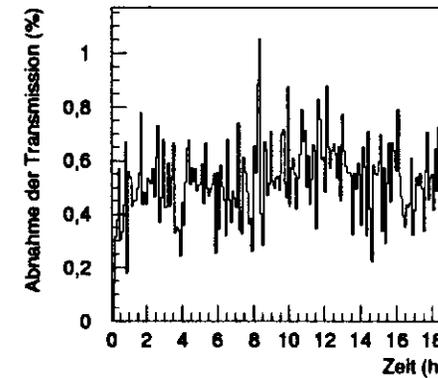


Abbildung 4.5: Stabilität der Meßapparatur zur Bestimmung des Strahlenschadens von 10 cm langen BCF12-Fasern während einer bestrahlungsfreien Phase bei einer Wellenlänge von 420 nm

Die optischen Komponenten der Meßapparatur, das sind Lichtquelle, Monochromator, Quarzfasern und der Photomultiplier, bestimmen den nutzbaren Spektralbereich des Aufbaus. Dieser liegt zwischen 240 nm und 740 nm. Eine detaillierte Beschreibung der Einzelkomponenten findet sich in [Wul95]. Die vorliegenden Messungen wurden mit einer Monochromatorauflösung von 5 nm durchgeführt.

Die zeitliche Auflösung hängt von der Meßdauer für ein Spektrum ab; sie beträgt für die untersuchten Fasern etwa 6 Minuten. Eine Zeitauflösung von 10 Sekunden ist erreichbar, wenn auf die spektrale Messung verzichtet wird und die Untersuchungen nur bei einer Wellenlänge durchgeführt werden. Bei den vorliegenden Untersuchungen wurde jedoch größerer Wert auf die spektralen Informationen gelegt, um die Überlagerung verschiedener kinetischer Vorgänge zu erkennen.

Ein wichtiger Faktor für die Güte der Messungen ist die zeitliche Stabilität der Messungen. Untersuchungen von ungeschädigten Fasern zeigen eine leicht wellenlängenabhängige Langzeitstabilität. Bei BCF12 wird zu Beginn der Messung eine leichte Abnahme der Transmission beobachtet. Dieser Rückgang wird auf den Einfluß des zur Untersuchung eingesetzten Lichtes zurückgeführt. Er erstreckt sich für BCF12 über das gesamte Spektrum und ist am stärksten bei einer Wellenlänge von 420 nm. In den ersten Stunden zeigt sich ein Abfall in der Transmission um etwa 0,5%; danach wird ein konstantes Signal gemessen (Abb. 4.5).

Eine Beeinflussung der Faser durch das Licht der Meßeinrichtung wird für SCSF81 ebenso beobachtet. Während bei hohen Wellenlängen um 630 nm ein leichter Abfall in der Intensität gemessen wurde, steigt diese im Bereich niedriger Wellenlängen

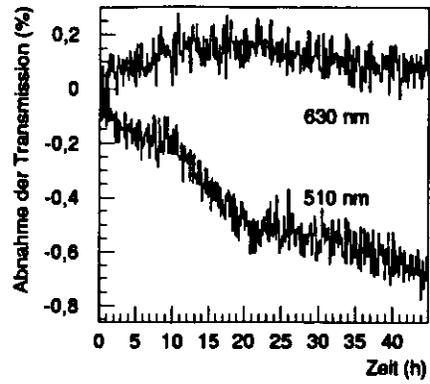


Abbildung 4.6: Stabilität der Meßapparatur zur Bestimmung des Strahlenschadens von SCSF81(Y7) mit einer Faserlänge von 100 cm während einer bestrahlungsfreien Phase bei Wellenlängen von 630 und 510 nm

um 510 nm leicht an (Abb. 4.6). Die Änderung der Transmission beträgt in beiden Fällen weniger als 1 % in 50 Stunden.

Kapitel 5

Beschreibung der Kinetik

5.1 Radikalbildung während der Bestrahlung

Durch die Röntgenbestrahlung werden im Polymer Radikale gebildet; die primäre Produktionsrate beliebiger Radikale $R_n\cdot$ mit $n = 1, 2$ hängt neben der Dichte des Materials und der Radikalausbeute pro eingestrahelter Energie nur von der Dosisleistung \dot{D} der Bestrahlung ab:

$$\frac{d}{dt}[R_n\cdot](t) = g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} \quad (5.1)$$

wobei mit g_n die Zahl der Radikale $R_n\cdot$ pro absorbierter Energie bezeichnet ist; diese ist proportional zum sogenannten g-Wert, der die Zahl der Radikale pro 100 eV absorbierter Energie angibt. Die Größe ρ beschreibt die Dichte des bestrahlten Polymers.

Diese Radikalproduktion würde im Falle stabiler Radikale einen linearen Anstieg des Strahlenschadens mit der applizierten Dosis bedeuten:

$$[R_n\cdot](t) = g_n \cdot \rho \cdot D(t) \quad (5.2)$$

Können die Radikale nach der Entstehung durch Rekombination oder den Einfluß von Sauerstoff wieder abgebaut werden, führt das nach einer gewissen Zeit zu einem Sättigungseffekt, weil der Produktion durch die Bestrahlung eine wachsende Zahl an Zerfällen entgegentritt.

Als Zerfallskanal kommt hier zum einen die Rekombination zweier Radikale zu einer optisch inaktiven¹ Verbindung in Frage ($R_n\cdot + R_n\cdot \rightarrow X$), die mit der Reaktionskonstanten k_n dem Anstieg durch die Bestrahlung entgegenwirkt:

$$\frac{d}{dt}[R_n\cdot](t) = g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} - k_n \cdot [R_n\cdot]^2(t) \quad (5.3)$$

¹ Optisch aktiv heißt in diesem Zusammenhang absorbierend im Gegensatz zur Drehung von Polarisationsrichtungen.

wobei dieser Ansatz von einer Reaktion zweiter Ordnung ausgeht, während zum anderen eine Rekombination mit Sauerstoff mit einer Reaktion erster Ordnung durch

$$\frac{d}{dt}[R_n\cdot](t) = g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} - k'_n \cdot [R_n\cdot](t) \quad (5.4)$$

beschrieben wird.

Im Gleichgewicht gilt für die Sättigungskonzentration $[R_{ns}\cdot]$ bei einer Reaktion zweiter Ordnung (Gl. 5.3):

$$g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} = k_n \cdot [R_{ns}\cdot]^2 \quad (5.5)$$

bzw.

$$[R_{ns}\cdot] = \sqrt{\frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{k_n}} \propto \sqrt{\dot{D}} \quad (5.6)$$

die Sättigungskonzentration $[R_{ns}\cdot]$ ist proportional zur Wurzel der Dosisleistung.

Die Reaktionskonstante k_n ist umgekehrt proportional zum Quadrat der Sättigungskonzentration:

$$k_n = \frac{1}{[R_{ns}\cdot]^2} \cdot \sqrt{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}} \quad (5.7)$$

Eine Änderung der Reaktionskonstante k_n wirkt sich im Gleichgewichtsfall auf die Sättigungskonzentration aus.

Viele Radikale absorbieren Licht; je nach Sorte zeigen sie unterschiedliches Absorptionsverhalten bezüglich der Wellenlänge des absorbierten Lichtes, der Stärke der Absorption und des zeitlichen Verhaltens während und nach der Bestrahlung. Optische Messungen ermöglichen daher die Bestimmung von Reaktionsmechanismen, wenn das spektrale Verhalten über einen längeren Zeitraum untersucht wird. Der gemessene Strahlenschaden $\Delta\mu$ ist mit der Radikalkonzentration durch den Wirkungsquerschnitt $\sigma_n(\lambda)$ für die Absorptionsfähigkeit der Radikale verknüpft:

$$\Delta\mu(\lambda, D, t) = \sigma_n(\lambda) \cdot [R_n\cdot](D, t) \quad (5.8)$$

Damit lautet die Lösung der Differentialgleichung 5.3 [Wul95]:

$$\begin{aligned} \Delta\mu(\lambda, D) &= \Delta\mu_S(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{g_n \cdot \rho \cdot k_n}{\dot{D}}} \cdot D\right) \quad \left| \kappa_n = g_n \cdot k_n \cdot \rho \right. \\ &= \Delta\mu_S(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa_n}{\dot{D}}} \cdot D\right) \end{aligned} \quad (5.9)$$

bzw.
$$\Delta\mu(\lambda, t) = \Delta\mu_S(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\kappa_n \cdot \dot{D}} \cdot t\right)$$

mit

$$\begin{aligned} \Delta\mu_S(\lambda, \dot{D}) &= \frac{\sigma_n(\lambda)}{k} \sqrt{\kappa_n \cdot \dot{D}} & \left| k_n = \frac{\kappa_n}{g_n \cdot \rho} \right. \\ &= \sigma_n(\lambda) \cdot g_n \cdot \rho \cdot \sqrt{\frac{\dot{D}}{\kappa_n}} \end{aligned} \quad (5.10)$$

Optische Messungen erfassen die Absorption, welche sowohl von der Produktionsrate, beschrieben durch die Größe g_n , als auch vom Wirkungsquerschnitt $\sigma_n(\lambda)$ abhängt. Eine Trennung dieser beiden Größen ist durch eine Absorptionsmessung nicht möglich, weshalb eine Zusammenfassung in eine neue Größe $\Sigma_n(\lambda)$ unter Einbeziehung der Dichte als Produkt beider Einzelgrößen sinnvoll ist. Damit vereinfacht sich der Ausdruck für die Sättigungskonzentration, und die Parameter κ_n und $\Sigma_n(\lambda)$ beschreiben damit den Anstieg des Strahlenschadens während der Bestrahlung:

$$\begin{aligned} \Delta\mu_S(\lambda, \dot{D}) &= \Sigma(\lambda) \cdot \sqrt{\frac{\dot{D}}{\kappa}} & (5.11) \\ \Sigma(\lambda) &= \sigma(\lambda) \cdot g \cdot \rho \\ [\Sigma(\lambda)] &= \frac{1}{\text{cm} \cdot \text{Gy}} \\ [\kappa] &= \frac{1}{\text{Gy} \cdot \text{h}} \end{aligned}$$

Betrachtet man nur sehr frühe Zeiträume der Bestrahlung, sind noch keine Rekombinationen zu beobachten. Die Beschreibung der Schadensentwicklung erfolgt dann mit Gleichung 5.1; die Lösung vereinfacht sich zu

$$\begin{aligned} \Delta\mu(\lambda, t) &= \sigma(\lambda) \cdot \overbrace{g_n \cdot \rho \cdot D \cdot t}^{[R_n \cdot]} & (5.12) \\ \text{bzw.} \quad \Delta\mu(\lambda, D) &= \Sigma_n(\lambda) \cdot D \end{aligned}$$

Für die Produktion stabiler Absorptionszentren, die keine Rekombinationen erfahren, gilt dieser Zusammenhang für die gesamte Bestrahlungsdauer.

5.2 Das Käfigmodell

Im Abschnitt 6.5.1 wird ein Modell qualitativ beschrieben, das für die Rekombination zweier Radikale eine bestimmte räumliche Nähe fordert: Begegnen sich zwei Radikale innerhalb dieser Entfernung, reagieren sie sofort; für isolierte Radikale, die eine größere Entfernung zueinander haben, wird ein Zerfall zweiter Ordnung beobachtet, der durch die Konzentration der Radikale bestimmt wird. Die Entfernung,

innerhalb derer es zur Rekombination kommt, wird als Käfig bezeichnet. Käfigmodelle wurden von verschiedenen Autoren zur Beschreibung des Zerfalls von Radikalen nach Bestrahlungsende benutzt (z. B. [Leb67]). Im folgenden wird das Modell auf den Zeitraum während der Bestrahlung erweitert [Wic97].

Durch diesen Ansatz ergibt sich während der Bestrahlung eine maximale Radikalkonzentration: ist jeder zweite Käfig mit einem Radikal besetzt, wird eine weitere Erzeugung von Radikalen unbesetzte Käfige auffüllen und in gleicher Häufigkeit in bereits besetzten Käfigen jeweils ein zweites Radikal induzieren und durch die dann folgende Rekombination entsprechend viele Radikale abbauen.

Die Sättigungskonzentration hängt nur von der Größe ΔV der Käfige ab:

$$[R_{nS}] = \frac{1}{2 \cdot \Delta V} \quad (5.13)$$

wenn zur Vereinfachung von würfelförmigen Käfigen anstelle von kugelförmigen Käfigen (mit einer maximalen Raumauffüllung von 74%) ausgegangen wird.

Um diese Sättigungskonzentration zu erreichen, ist die Dosisleistung der Bestrahlung unerheblich. Die maximale Sättigungskonzentration wird unabhängig von der Dosisleistung bei einer bestimmten Dosis (mit exponentieller Annäherung nach Gl. 5.16) eintreten.

Die Wahrscheinlichkeit P_{occ} , daß ein Radikal in einem bereits besetzten Käfig induziert wird, beträgt zu Beginn der Bestrahlung 0% und bei Erreichen der Sättigung 50%. Sie ergibt sich aus dem Anteil der mit Radikalen besetzten Käfige:

$$P_{occ} = \frac{[R_n \cdot]}{2 \cdot [R_{nS}]} = [R_n \cdot] \cdot \Delta V \quad (5.14)$$

Zusätzlich erzeugte Radikale treffen mit der Wahrscheinlichkeit P_{occ} auf einen besetzten Käfig und reduzieren dann die Gesamtzahl der Radikale um zwei Radikale. Wird nur der Zerfall durch die Rekombinationen innerhalb eines Käfigs berücksichtigt, gilt für die Änderung der Radikalzahl folgende Differentialgleichung:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}[R_n \cdot](t) &= g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} - g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot P_{occ} \cdot 2 \\ &= g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} - g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot 2 [R_n \cdot] \cdot \Delta V \end{aligned} \quad (5.15)$$

Die Lösung dieser Differentialgleichung lautet:

$$[R_n \cdot](t) = [R_{nS} \cdot] \cdot \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{nS} \cdot]} \cdot t\right) \right\} \quad (5.16)$$

Die Sättigungskonzentration wird nach Gleichung 5.13 nur von der Käfiggröße bestimmt.

5.2.1 Berücksichtigung eines Zerfalls zweiter Ordnung

Mit Berücksichtigung des Zerfalls von isolierten Radikalen durch eine Reaktion zweiter Ordnung erweitert sich die Differentialgleichung 5.15 zu:

$$\frac{d}{dt}[R_n](t) = g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot (1 - [R_n] \cdot 2 \cdot \Delta V) - k_n \cdot [R_n]^2 \quad (5.17)$$

Diese Differentialgleichung kann durch Integration [BS89, S. 37, Ziffer 40] gelöst werden und mit neuen Parametern vereinfacht dargestellt werden [Wic97]:

$$[R_n](t) = [R_{ns}] \cdot \frac{1 - e^{-\beta t}}{1 + \epsilon + \epsilon \cdot e^{-\beta t}} \quad (5.18)$$

mit $\beta = \frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{ns}]} \cdot \sqrt{1 + \frac{4 \cdot k_n}{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}} \cdot [R_{ns}]^2}$

und $\epsilon = \frac{1}{2} \sqrt{1 + \frac{4 \cdot k_n}{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}} \cdot [R_{ns}]^2} - \frac{1}{2}$.

Drei Parameter ($[R_{ns}]$, β und ϵ) beschreiben den Verlauf der Radikalentwicklung unter Berücksichtigung des Käfigmodells. Die maximal erreichbare Sättigungskonzentration wird durch Gl. 5.13 für den Fall stabiler Einzelradikale beschrieben; β ist die neue Zeitkonstante der Reaktion und ϵ gibt an, wie stark die tatsächlich erreichte Sättigungskonzentration $[R_{ns}]$ von der erreichbaren Sättigungskonzentration abweicht:

$$[R_n](t) \xrightarrow{t \rightarrow \infty} [R_{ns}] = \frac{[R_{ns}]}{1 + \epsilon} \quad (5.19)$$

Die erreichbare Sättigungskonzentration bezieht sich dabei auf die in Gleichung 5.13 beschriebenen Radikale, die als isolierte Radikale nicht zerfallen.

Diese Größen sind im Experiment nicht direkt zugänglich; bei optischen Messungen lassen sich die Anteile der einzelnen Reaktionsmechanismen in einigen Fällen bestimmen, wenn genügend Meßpunkte vorliegen und eine Sättigung erreicht wurde. In diesen Fällen kann direkt von Gleichung 5.17 ausgegangen werden. Wird diese mit dem Wirkungsquerschnitt $\sigma(\lambda)$ multipliziert, erhält man anstelle der Radikalkonzentration die zusätzliche Absorption $\Delta\mu(\lambda, t)$ (Gl. 5.12). Diese setzt sich aus einem instabilen Anteil $\widetilde{\Delta\mu}(\lambda, t)$ und einem permanenten Anteil $\Delta\mu_{perm}(\lambda, D)$ zusammen. Ein möglicher permanenter Anteil in der Absorption ist bisher nicht berücksichtigt worden; dieser muß auch nicht radikalischen Ursprungs sein und äußert sich einem konstanten Term in der Differentialgleichung, der nach der Integration einen linearen Anstieg übergeht und nach Bestrahlungsende eine unverändert konstante Absorption (Endschaden oder permanenter Schaden) liefert.

Im Experiment (BCF12) zeigt sich eine kurzlebige Absorption für das langwellig absorbierende Radikal, das mit R_2 bezeichnet wird. Aus den Meßdaten lassen sich die Steigungen der Absorptionsentwicklungen direkt bestimmen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_2 &= \sigma_2(\lambda) \cdot \frac{d}{dt} [R_2] & (5.20) \\ &= \sigma_2(\lambda) \cdot g_2 \cdot \rho \cdot \dot{D} - g_2 \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot 2\Delta V \cdot \sigma_2(\lambda) \cdot [R_2] - k_2 \cdot \sigma_2(\lambda) \cdot [R_2]^2 \\ &= \underbrace{\Sigma_2(\lambda) \cdot \dot{D}}_{\text{Produktion}} - \underbrace{\Sigma_2(\lambda) \cdot \dot{D} \cdot \frac{\widetilde{\Delta\mu}_2}{\Delta\mu_{2S}}}_{\text{Käfige}} - \underbrace{\frac{k_2}{\sigma_2(\lambda)} \cdot \widetilde{\Delta\mu}_2^2}_{\text{Zerfall 2. Ordnung}} \end{aligned}$$

Der erste Summand beschreibt die kontinuierliche Produktion von Absorptionszentren, der zweite die Rekombination von zwei Radikalen als Paar innerhalb eines Käfigs und der dritte den Zerfall isolierter Radikale. Zu Beginn der Bestrahlung treten noch keine Rekombinationen auf; der erste Summand trägt als einziger zur Absorptionsänderung bei. Tritt eine Sättigung während der Bestrahlung auf (Abb. 5.1), ist die Summe aller drei Summanden Null. Nach Bestrahlungsende sind nur noch Zerfälle durch Prozesse zweiter Ordnung zu beobachten, beschrieben durch den dritten Summanden. Auf die Messungen bezogen, für die eine Steigungsbestimmung möglich ist, wird Gleichung 5.20 dargestellt als:

$$\frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_2 = \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_+ + \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Käfige}} + \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Zerfälle}} \quad (5.21)$$

Während der Sättigung gilt:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_2 &= 0 \\ \Rightarrow \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Käfige}} &= -\frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_+ - \frac{d}{dt} \widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Zerfälle}} \quad (5.22) \end{aligned}$$

Damit lassen sich alle drei Steigungen bestimmen.

Nach Gleichung 5.20 unterscheiden sich die Produktionsrate durch die Bestrahlung und die Zerfallsrate in den Käfigen nur durch den Quotienten aus der erreichbaren und der tatsächlich erreichten Sättigungskonzentration. Dieser Quotient (Gleichung 5.19, multipliziert mit σ) liefert, eingesetzt in Gleichung 5.22, die Größe ϵ :

$$\epsilon = \frac{-\widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Zerfälle}}}{\widetilde{\Delta\mu}_+ + \widetilde{\Delta\mu}_-^{\text{Zerfälle}}} \quad (5.23)$$

Wird ein reiner Zerfall nach einem Prozeß zweiter Ordnung beobachtet, stimmen beide Steigungen bis auf das Vorzeichen überein. Im Nenner der Gleichung 5.23 steht dann eine Null; der Wert ϵ wird unendlich groß. Das entspricht im Käfigmodell einer verschwindenden Käfiggröße; es finden nur Rekombinationen isolierter Radikale statt. Die erreichbare Sättigungskonzentration ist dann auch unendlich groß und wird nur durch die Wurzel der Dosisleistung bestimmt.

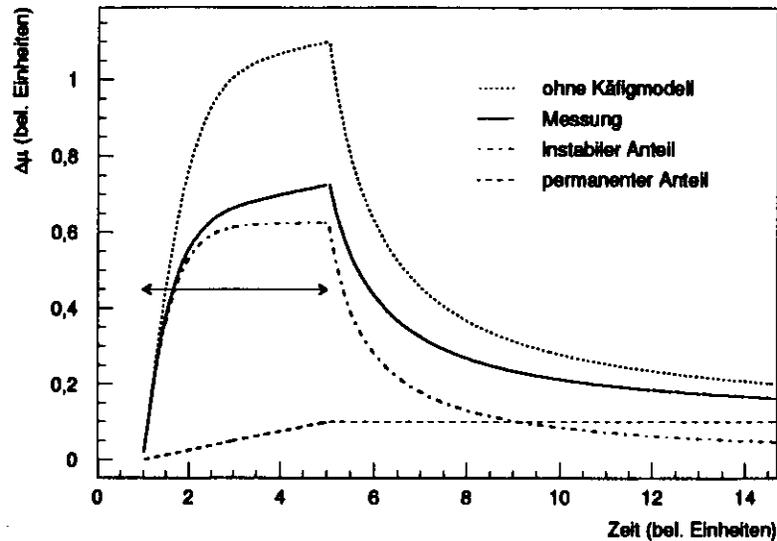


Abbildung 5.1: Prinzipielle Schadensentwicklung während und nach der Bestrahlung (\leftrightarrow). Die Absorption setzt sich aus einem instabilen und einem permanenten Anteil zusammen. Der instabile Anteil $\widetilde{\Delta\mu}$ eignet sich zur quantitativen Bestimmung der Rekombinationen nach dem Käfigmodell; zu Beginn der Bestrahlung finden keine Rekombinationen statt, der Anstieg ist sehr steil. In dieser Phase wird der Anstieg allein durch die Radikalproduktion bestimmt. In der Sättigung finden Rekombinationen durch zwei Prozesse statt: Reaktionen zweiter Ordnung und Reaktionen in Käfigen. Nach der Bestrahlung werden nur noch Reaktionen zweiter Ordnung beobachtet, der Abfall ist langsamer als der Anstieg zu Beginn der Bestrahlung (in diesem Beispiel: $\epsilon = 0,6$).

Die neue Reaktionskonstante β hängt nach Gleichung 5.18 mit ϵ zusammen:

$$\begin{aligned}\beta &= \frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{ns}]} \cdot (1 + 2 \cdot \epsilon) \\ &= \frac{\sigma(\lambda) \cdot g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{\widetilde{\Delta\mu}_S} \cdot (1 + 2 \cdot \epsilon) \\ &= \frac{\widetilde{\Delta\mu}_+}{\widetilde{\Delta\mu}_S \cdot (1 + \epsilon)} \cdot (1 + 2 \cdot \epsilon)\end{aligned}\quad (5.24)$$

Dabei bezeichnet $\widetilde{\Delta\mu}_S$ die tatsächlich erreichte Sättigungsabsorption für den instabilen Anteil der Absorption.

5.2.2 Berücksichtigung eines Zerfalls erster Ordnung

Die Reaktionskinetik bei einem Zerfall erster Ordnung entspricht der Kinetik für das Käfigmodell, mit dem Unterschied, daß die Reaktionskonstante von der Dosisleistung unabhängig ist (Gl. 5.4). Die Differentialgleichung lautet

$$\frac{d}{dt}[R_n](t) = g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} - g_n \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot 2 \cdot \Delta V \cdot [R_n] - k' \cdot [R_n] \quad (5.25)$$

Als Lösung erhält man:

$$[R_n](t) = \frac{[R_{ns}]}{1 + \zeta} \cdot (1 - e^{-\alpha t}) \quad (5.26)$$

$$\text{mit} \quad \alpha = \frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{ns}]} + k'$$

$$\text{und} \quad \zeta = \frac{k' \cdot [R_{ns}]}{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}$$

Die Bestimmung des Parameters ζ erfolgt ebenso wie die der Größe ϵ im vorigen Abschnitt, die Zeitkonstante der Reaktion ist mit α bezeichnet. Für die Steigungen der Absorptionsentwicklung gilt Gleichung 5.20, wenn der dritte Summand durch eine Reaktion erster Ordnung ersetzt wird:

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\Delta\mu} = \underbrace{\Sigma(\lambda) \cdot \dot{D}}_{\text{Produktion}} - \underbrace{\Sigma(\lambda) \cdot \dot{D} \cdot \frac{\widetilde{\Delta\mu}}{\widetilde{\Delta\mu}_S}}_{\text{Käfige}} - \underbrace{k_n \cdot \widetilde{\Delta\mu}}_{\text{Zerfall 1. Ordnung}} \quad (5.27)$$

Die übrigen der Gleichungen 5.19 bis 5.23 gelten analog (mit ζ anstelle von ϵ), so daß für die Größe ζ gilt:

$$\zeta = \frac{\overset{\text{Zerfälle}}{-\Delta\mu_-}}{\underset{\text{Zerfälle}}{\Delta\mu_+} + \Delta\mu_-} \quad (5.28)$$

Für die Zeitkonstante α der Reaktion gilt:

$$\begin{aligned}\alpha &= (\zeta + 1) \cdot \frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{ns}]} = \frac{g_n \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{ns}]} \\ &= \frac{\widetilde{\Delta\mu}_+}{\widetilde{\Delta\mu}_S}\end{aligned}\quad (5.29)$$

Die Reaktionskonstante k' läßt sich aus Gleichung 5.26 bestimmen:

$$\begin{aligned} k' &= \frac{\zeta \cdot g \cdot \rho \cdot \dot{D}}{[R_{nS}]} \\ &= \frac{\overline{\Delta\mu_+} \cdot \zeta}{\Delta\mu_S \cdot (\zeta + 1)} = \alpha \cdot \frac{\zeta}{\zeta + 1} \end{aligned} \quad (5.30)$$

Diese Beschreibung der Kinetik liefert eine gewöhnliche Exponentialfunktion; erkennbar wird eine aus Käfigmodell und Zerfällen erster Ordnung zusammengesetzte Kinetik aus unterschiedlichen Steigungen zu Beginn und nach Beendigung der Bestrahlung und bei einer Beobachtung der Dosisleistungsabhängigkeit der Sättigungskonzentration: Während bei einer einfachen Reaktion erster Ordnung die Sättigungskonzentration proportional zur Dosisleistung ist, steigt sie bei Mitwirkung von Zerfällen in Käfigen mit der Dosisleistung und nähert sich asymptotisch der durch die Käfiggröße bestimmten Sättigungskonzentration.

5.3 Radikalabbau nach der Bestrahlung

5.3.1 Reaktion zweiter Ordnung

Die Beschreibung des Radikalabbaus erfolgt grundsätzlich mit den gleichen Differentialgleichungen wie bei Beschreibung des Anstiegs; allerdings fehlt jedesmal der Ausdruck für die Radikalproduktion, die durch die Bestrahlung verursacht wird.

Die beiden oben beschriebenen Fälle, Rekombination über einen Prozeß zweiter Ordnung sowie zusätzliche Reaktionen in Käfigen, ergeben einen ähnlichen Verlauf der Radikalkonzentration nach Beendigung der Bestrahlung. Für eine Reaktion zweiter Ordnung gilt die vereinfachte Differentialgleichung (nach Gl. 5.3) für die Zeit nach Bestrahlungsende:

$$\frac{d}{dt}[R_n](t) = -k_n \cdot [R_n]^2(t) \quad (5.31)$$

Die Anfangskonzentration für den Zeitpunkt des Bestrahlungsendes entspricht der tatsächlich erreichten Sättigungskonzentration $[R_{nS}]$. Die zugehörige Lösung für die gemessene Absorption ($n = 2$) lautet:

$$\Delta\mu_2(\lambda, t) = \frac{\overline{\Delta\mu_{2S}}}{1 + \overline{\Delta\mu_{2S}} \cdot \frac{1}{\sigma(\lambda)} \cdot (t - t_e)} \quad (5.32)$$

wobei t_e den Zeitpunkt beschreibt, zu dem die Radikalproduktion aussetzt. Während der Ausheilung steigt der Kehrwert der Absorption linear mit der Zeit:

$$\frac{1}{\Delta\mu_2(\lambda, t)} = \frac{1}{\overline{\Delta\mu_{2S}}} + \frac{k_2}{\sigma(\lambda)} \cdot (t - t_e) \quad (5.33)$$

Bei der Beschreibung der Rekombinationen mit Berücksichtigung des Käfigmodells wird die gleiche Differentialgleichung zugrunde gelegt (nach Gl. 5.17). Berechenbar ist die Reaktionskonstante nach Gleichung 5.18 mit Hilfe der Parameter ϵ und $[R_{2S}]$:

$$\begin{aligned} k_2 &= \frac{(1 + 2 \cdot \epsilon)^2 - 1}{4 \cdot [R_{2S}]^2} \cdot g_2 \cdot \rho \cdot \dot{D} \\ \frac{k_2}{\sigma_2} &= \frac{(1 + 2 \cdot \epsilon)^2 - 1}{4 \cdot (\Delta\mu_{2S})^2} \cdot g_2 \cdot \rho \cdot \dot{D} \cdot \sigma_2 \\ &= \frac{(1 + 2 \cdot \epsilon)^2 - 1}{4 \cdot (\overline{\Delta\mu_{2S}})^2 \cdot (1 + \epsilon)^2} \cdot \overline{\Delta\mu_+} \end{aligned} \quad (5.34)$$

Das zeitliche Verhalten bei einer nur teilweisen Ausheilung wird am Ende des nächsten Abschnitts beschrieben.

5.3.2 Reaktion erster Ordnung

Die Lösung der Differentialgleichung, die nur eine Reaktion erster Ordnung enthält, ergibt eine einfache Exponentialfunktion für Zeiten nach Beendigung der Bestrahlung (t_e):

$$[R_n](t) = [R_{nS}] \cdot e^{-k' \cdot (t - t_e)} \quad (5.35)$$

Beim Übergang zur gemessenen Absorption wird die Gleichung 5.35 mit dem Wirkungsquerschnitt σ multipliziert:

$$\Delta\mu(t) = \overline{\Delta\mu_S} \cdot e^{-k' \cdot (t - t_e)} \quad (5.36)$$

5.4 Überlagerung verschiedener Absorptionen

In den vorhergehenden Abschnitten wurden die unterschiedlichen kinetischen Modelle zur Beschreibung der Absorptionsentwicklung vorgestellt. Die zugrunde liegenden chemischen Reaktionen bestimmen im einzelnen die Kinetik. Dabei müssen (für BCF12) drei verschiedene Absorptionszentren unterschieden werden: permanente Absorption molekularen Ursprungs $\Delta\mu_{perm}$, kurzlebige radikalische Absorption $\Delta\mu_1$, die nur bei Anwesenheit von Sauerstoff zurückgebildet wird, und kurzlebige radikalische Absorption $\Delta\mu_2$.

$$\Delta\mu = \Delta\mu_{perm} + \Delta\mu_1 + \Delta\mu_2 \quad (5.37)$$

Während der Bestrahlung entstehen alle drei Arten von Absorptionszentren. Wenn sich in der Faser Sauerstoff befindet, wird die Absorption durch Radikal R_1 nicht beobachtet, weil diese Radikale sofort durch den Sauerstoff inaktiviert werden. Ohne

Sauerstoff zeigt sich durch dieses Radikal ein linearer Anstieg der Absorption mit der verabreichten Dosis, weil die Radikale nicht zerfallen. Der permanente Anteil der Absorption zeigt ebenfalls einen linearen Anstieg. Die Absorption von Radikal R_2 zeigt Sättigungseffekte, weil der Produktion eine ansteigende Rekombination gegenübertritt. Die einzelnen Absorptionen lassen sich trennen, wenn diese kinetischen Eigenschaften der Absorptionsentwicklungen ausgenutzt werden.

Die Reaktionen, an denen Radikale beteiligt sind, lassen sich in drei Phasen einteilen (Abb. 5.2). Die erste Phase ist die Erzeugung der Radikale (Initiation), in der zweiten Phase (Propagation) binden die Radikale Sauerstoff, und in der dritten Phase (Termination) werden die Radikale inaktiviert.

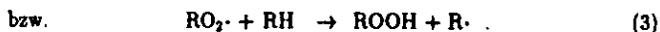
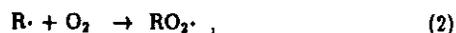
Initiation

Die Bestrahlung erzeugt durch Ionisationen Radikale im Material, welche durch einen Punkt gekennzeichnet werden. Nicht weiter benannte Molekülreste eines Polymers werden mit R bezeichnet. Die Erzeugung von Radikalen folgt dann



Propagation

Bei Anwesenheit von Sauerstoff werden Peroxiradikale ($RO_2\cdot$) gebildet, die ihrerseits mit den Polymerketten reagieren können:



Diese beiden Reaktionen führen zu einem Sauerstoffabbau, ohne daß sich die Radikalkonzentration im Material durch diese Reaktionen ändert. Die radikalische Eigenschaft wird von einem Polymermolekül auf ein anderes übertragen.

Termination

Der Radikalabbau erfolgt über die drei folgenden Reaktionen, die Vernetzungen der Polymere bewirken:



Die Reaktionen (2) und (3) können für ein erzeugtes Radikal solange immer wieder ablaufen, bis eine Terminierungsreaktion (4)-(6) eintritt.

Bei diesem Reaktionsschema werden zwei Lebensdauern, eine (τ_R) für das gebildete Radikal und eine zweite (τ_{RO_2}) für das Peroxiradikal, beobachtet. Das Radikal R_1 (Absorption um 420 nm) hat eine sehr kurze Lebensdauer: $\tau_{R_1} \ll \tau_{RO_2}$; das bedeutet, daß die Konzentration an Peroxiradikalen [RO_2] wesentlich größer als die der

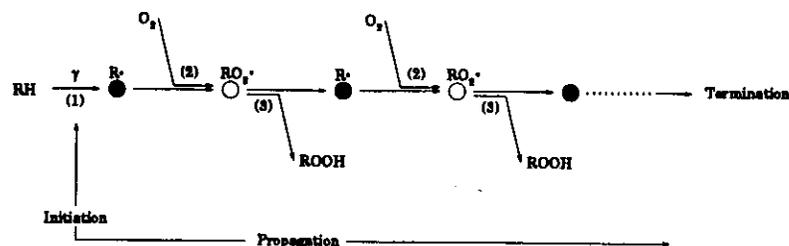


Abbildung 5.2: Reaktionen der Radikale mit Sauerstoff (Propagation): Durch ein Radikal können mehrere Sauerstoffmoleküle gebunden werden. Die Zahlen in Klammern beziehen sich auf die Numerierung der Reaktionen im Text.

absorbierenden Radikale [R_1] ist. Diese Deutung deckt sich mit Beobachtungen in Polymethylmethacrylat (PMMA): Die Absorption im sichtbaren Bereich zeigt ein anderes zeitliches Verhalten als die Radikalkonzentration, die mit Hilfe der Elektronenspinresonanz direkt bestimmt werden kann [Lad97]. Absorptionen in Polymeren können nicht ausschließlich auf Radikale zurückgeführt werden.

Anders sieht das Verhältnis der Lebensdauern für Radikal R_2 aus: die Lebensdauer für das Radikal R_2 liegt im Bereich einiger Stunden (Abb. 6.16 und [Wul95]), so daß gilt: $\tau_{R_2} \gg \tau_{RO_2}$; damit dominiert das Radikal R_2 im Material und ist für die starke Absorption im langwelligen Bereich verantwortlich.

Kapitel 6

Untersuchungen der Faser BCF12

6.1 Vorbemerkungen

Die Bestrahlung erzeugt im Material Radikale, die zur Absorption von Licht führen. Die Anzahl der erzeugten Radikale steigt mit der Anzahl an ionisierten Molekülen im Material. Mit Anstieg der verabreichten Dosis steigt deshalb auch die Absorption. Die gebildeten Radikale weisen starke spektrale Unterschiede bezüglich ihres Absorptionsverhaltens auf; es werden sehr breitbandige Absorptionszentren mit verschiedenen Absorptionswellenlängen beobachtet (z. B. Abb. 6.1). Außerdem unterscheiden sich die Radikale sehr stark bezüglich ihres zeitlichen Verhaltens; einige Radikale sind sehr reaktionsträge und daher langlebig, während andere Radikale nur kurze Lebensdauern aufweisen. Das zeitliche Verhalten wird durch äußere Einflüsse wie Umgebungsatmosphäre und Temperatur nachhaltig beeinflusst [Biç92]. In den folgenden Abschnitten wird das zeitliche Verhalten der Absorption beschrieben, wobei der Einfluß des Sauerstoffs berücksichtigt wird. Dabei erfolgt eine Einteilung bezüglich der Entwicklungsphasen des Strahlenschadens; die Anstiegsphase während der Bestrahlung, die bei Anwesenheit von gelöstem Sauerstoff in der Faser in zwei Phasen eingeteilt werden kann, und die anschließende Ausheilungsphase.

6.2 Einfluß der Umgebungsatmosphäre auf den Strahlenschaden

Der Einfluß der Umgebungsatmosphäre während der Bestrahlung wird auf die Diffusion von Sauerstoff in das Material zurückgeführt. Hierbei kann der Sauerstoff als Reaktionspartner zu einer erhöhten Bildung von Radikalen beitragen; ebenso können bereits vorhandene Radikale durch den Sauerstoff in nicht absorbierende Verbindungen (Peroxiradikale) umgewandelt werden. Im ersten Fall zeigt sich in sauerstoffhaltiger Atmosphäre ein größerer Strahlenschaden, während im zweiten Fall der Sauerstoff den Strahlenschaden deutlich reduziert. Bei Abwesenheit von Sauerstoff ist eine solche Ausheilung nicht zu beobachten.

Bei BCF12 dominiert der ausheilende Effekt (Abb. 6.1); bei Bestrahlung in Argon wird ein bis zu achtfacher Strahlenschaden beobachtet. Ein Einfluß von Argon auf

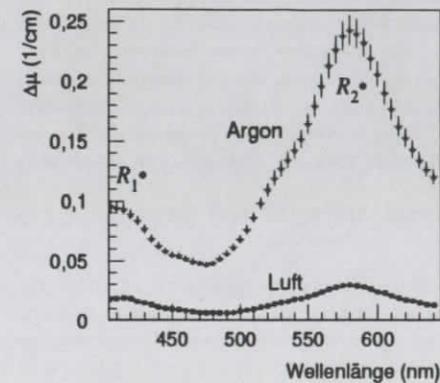


Abbildung 6.1: Vergleich zweier Bestrahlungen in Argon bzw. Luft von BCF12-Fasern mit einer Länge von 6,5 cm; die Abbildung zeigt den Schaden zum Ende der Bestrahlung mit der Kennzeichnung für die beiden stärksten Absorptionszentren (s. Abschnitt 6.3); die Gesamtdosis betrug 2,5 kGy bei einer Dosisleistung von 42 Gy/h.

die Entwicklung des Strahlenschadens konnte bislang nicht nachgewiesen werden.

6.3 Zeitliche Entwicklung während der Bestrahlung

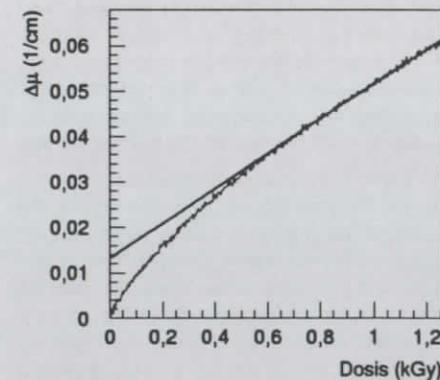


Abbildung 6.2: Der Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 bei einer Wellenlänge von 430 nm während der Bestrahlung in Argon ($D=1,26$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h). Die Anstieg des Strahlenschadens im linearen Bereich beträgt für diese Faser $(38 \pm 2) \cdot 10^{-6} \text{ Gy}^{-1} \text{ cm}^{-1}$.

Während der Bestrahlung werden im Material mindestens drei Arten von Absorptionszentren gebildet: stabile Absorptionszentren, die für den permanenten Schaden verantwortlich sind, langlebige Radikale, die eine sichtbare Ausheilung nach der Bestrahlung bewirken und kurzlebige Radikale, die schon während der Bestrahlung und in kürzester Zeit nach Beendigung der Bestrahlung zerfallen.

Ohne eine Zuordnung der Radikale nach diesen Kategorien vorzunehmen, werden

die Radikale, die für die Absorptionszentren in Abb. 6.1 verantwortlich sind, mit den Bezeichnungen R_1 (Absorption um 420 nm) und R_2 (Absorption um 580 nm) versehen. In der Abbildung ist außerdem im Wellenlängenbereich um 525 nm eine leichte zusätzliche Absorption zu erkennen; diese wird auf ein Radikal zurückgeführt, das nur in Gegenwart von Sauerstoff ausheilt [BPD91] und Radikal R_1 zugeordnet werden kann. Allerdings kann nicht jede Absorption Radikalen zugeordnet werden, insbesondere deuten permanente Schäden auf einen anderen Ursprung hin: Wenn die Absorption auch lange nach Bestrahlungsende keine Änderung mehr erfährt, spricht man von einem permanenten Schaden oder Endschaden. Dieser wird auch bei Anwesenheit von Sauerstoff beobachtet, welcher zu einem vollständigen Abbau von Radikalen beitragen kann. Die übrige Absorption kann molekularen Ursprungs sein.

6.3.1 Radikalbildung während der Bestrahlung in Argon

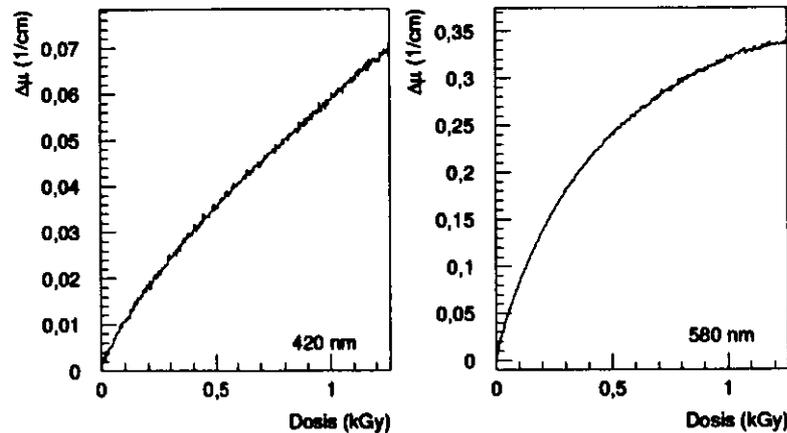


Abbildung 6.3: Entwicklung des Strahlenschadens ($\lambda=420$ nm bzw. 580 nm) während der Bestrahlung in Argonatmosphäre ($D=1,26$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h. Der Anstieg im linearen Bereich ($\lambda=420$ nm) beträgt $(45 \pm 2) \cdot 10^{-6}$ Gy $^{-1}$ cm $^{-1}$.

Während der Bestrahlung werden die beiden Radikalsorten R_1 und R_2 erzeugt. Die Produktion von Radikal R_1 (420 nm) wird im wesentlichen durch Gleichung 5.1 (S. 31) beschrieben; der größte Anteil der Absorption heilt kaum aus (s. Abschnitt 6.4). Es handelt sich unter Sauerstoffabschluß um ein sehr stabiles Radikal, dessen Erzeugung auf die Schädigung des Polystyrols als Basismaterial zurückzuführen ist [Biç92, Neu92]. Die Absorption in diesem Wellenlängenbereich ist für die Gelbfärbung bestrahlten Polystyrols verantwortlich. Erste Sättigungseffekte für die

se Radikale wurden erst bei Dosen ab 100 kGy beobachtet [Har69]. Der quantitative Vergleich mit Bestrahlungen anderer Szintillatoren (SCSN38) bestätigt, daß das Basismaterial für diese Absorptionen verantwortlich ist: Frühere Messungen erfolgten in der Regel etwa einen Tag nach Bestrahlungsende; nach dieser Zeit ist ein möglicher kurzlebiger Anteil der Absorption weitgehend ausgeheilt. Diese Messungen ergeben deshalb einen Anfangsschaden, der durch den linearen Anstieg des Strahlenschadens mit der Dosis während der Bestrahlung (Abb. 6.2) bestimmt wird. Bei BCF12 beträgt die Schadenszunahme pro Dosis (34 ± 3) MGy $^{-1}$ cm $^{-1}$ bei einer Wellenlänge von 430 nm; frühere Untersuchungen an SCSN38 ergaben bei einer Dosisleistung von 2 kGy/h einen Wert von (36 ± 3) MGy $^{-1}$ cm $^{-1}$ [Dan96]. Diese Schadenszunahme ist von der Dosisleistung der Bestrahlung unabhängig; allein die verabreichte Dosis ist für den Anfangsschaden um 420 nm verantwortlich (Abb. 6.4).

Für das Radikal R_2 ist eine deutliche Änderung in der Produktionsrate zu erkennen; der steile Anstieg der Absorption zu Beginn der Bestrahlung (Abb. 6.3) flacht schnell ab. Dieses Verhalten zeigt sich, wenn während der Bestrahlung Rekombinationen zu beobachten sind; mit der Konzentration der Radikale steigt die Zahl der Rekombinationen, während die Radikalproduktion durch die Bestrahlung unverändert bleibt. Diese Prozesse führen auf eine Sättigung nach Gleichung 5.3 bzw. 5.4 (S. 31). Diese Sättigung ließe sich jedoch nicht beobachten, wenn bei der gleichen Wellenlänge ein nicht zerfallendes Radikal absorbiert oder ein weiterer Prozeß eine verbesserte Transmission (z. B. durch Farbstoffzerstörung) zur Folge hätte. Diese Effekte äußern sich in einem permanenten Endschaden (positiv oder negativ) und werden im Abschnitt 6.4 behandelt.

Der Sättigungsprozeß für die Erzeugung von Radikal R_2 wird zu einem großen Teil von der Dosisleistung der Bestrahlung bestimmt. Die Sättigungskonzentration der Radikale hängt nach Gleichung 5.6 (S. 32) von der Wurzel der Dosisleistung ab. Für die gezeigten Schadensverläufe (Abb. 6.5) ergibt sich in Übereinstimmung mit diesem Ansatz eine etwa doppelte Sättigungskonzentration der Radikale bei vierfacher Dosisleistung. Diese Übereinstimmung ist nur dann zu finden, wenn während der Bestrahlung kein Sauerstoff in die Probe eindiffundiert, der mit einem Teil der Radikale reagiert und dadurch die Zahl der Rekombinationen erhöht. Entsprechend fällt dann der Anstieg für die Absorption des Radikals R_1 flacher aus.

6.3.2 Einfluß des gelösten Sauerstoffs

Bestrahlung in Argon heißt, daß die Untersuchung einer Faser nach Unterbringung in der Argonatmosphäre nach einigen Stunden beginnt. Je nach vorheriger Lagerungsatmosphäre befindet sich in der Faser ein kleiner oder größerer Anteil Sauerstoff. Dieser in der Faser befindliche Sauerstoff hat einen starken Einfluß auf die Entwicklung des Strahlenschadens: er reagiert mit den gebildeten Radikalen und reduziert dadurch die Absorption. Solange der gelöste Sauerstoff in der Faser nicht verbraucht ist, wird ein Strahlenschaden erwartet, wie er bei Bestrahlung in sauerstoffhaltiger Atmosphäre beobachtet wird (Abb. 6.1).

Abb. 6.6 zeigt diesen Einfluß deutlich; in der ersten Phase der Bestrahlung zeigt sich bei 420 nm ein schwacher, konstanter Anstieg des Strahlenschadens, während bei 580 nm eine Sättigung in der Absorption zu sehen ist. Dieses Verhalten entspricht

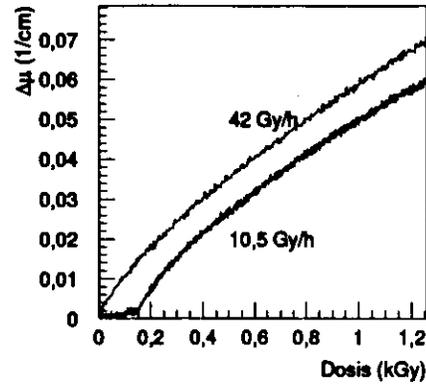


Abbildung 6.4: Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 bei Bestrahlung in Argon für zwei Dosisleistungen bei einer Wellenlänge von 420 nm.

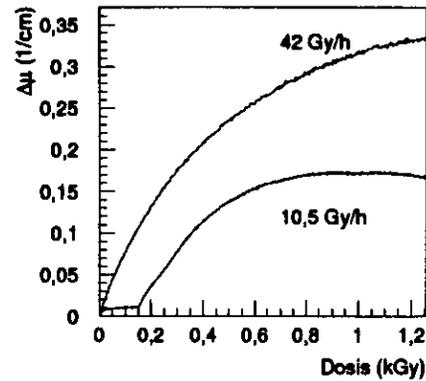


Abbildung 6.5: Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 bei Bestrahlung in Argon für zwei Dosisleistungen bei einer Wellenlänge von 580 nm. Der Knick im Anstieg während der Bestrahlung mit 10,5 Gy pro Stunde ist auf Sauerstoff zurückzuführen, der in der Probe gelöst ist und wird im Abschnitt 6.3.2 behandelt. Eine von der Dosisleistung unabhängige Darstellung zeigt Abb. 6.27 (S. 64).

dem im vorigen Abschnitt beschriebenen Verhalten bei Bestrahlung in Argon, allerdings mit einer größeren Zahl an Rekombinationen, die durch den anwesenden Sauerstoff ermöglicht werden.

Nach etwa 7 Stunden Bestrahlungszeit beginnt eine zweite Phase in der Schadensentwicklung; für beide Wellenlängen ist eine deutliche Zunahme des Strahlenschadens zu beobachten. Wie im ersten Anstieg zeigt sich bei 580 nm eine Sättigung in der Absorption, während bei 420 nm der zunächst steilere Anstieg in einen linearen Anstieg übergeht. Als dritte Phase ist die Ausheilung zu sehen, die unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung beginnt (s. Abschnitt 6.4).

Die Dauer der ersten Phase hängt von der Menge des Sauerstoffs ab, die zu Beginn der Bestrahlung in der Probe gelöst ist. Abbildung 6.7 zeigt den Anstieg für Proben, die vor der Bestrahlung in Argon, Luft oder Sauerstoff gelagert wurden. Jedoch liegen zwischen der Installation der Fasern in der Argonatmosphäre und dem

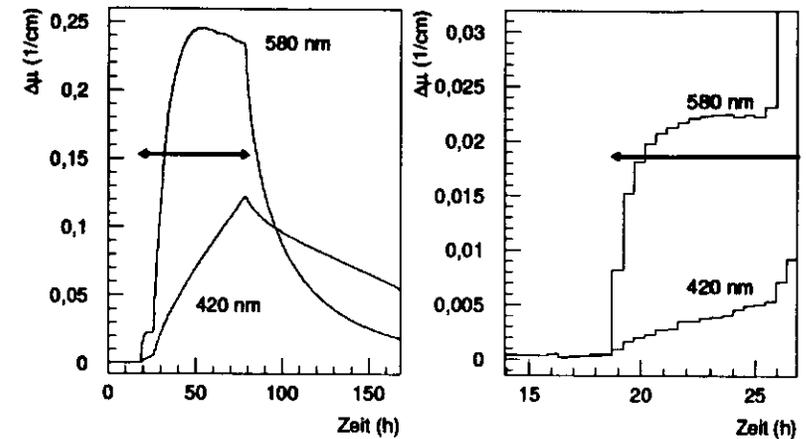


Abbildung 6.6: Beispielhafte Entwicklung des Strahlenschadens ($\lambda=420$ nm bzw. 580 nm) während und nach der Bestrahlung in Argonatmosphäre über die gesamte Meßzeit; der Pfeil (\leftrightarrow) markiert die Bestrahlungszeit. Die applizierte Dosis betrug 2,5 kGy bei einer Dosisleistung von 42 Gy/h.

Beginn der Bestrahlung unterschiedlich lange Zeiten; da während dieser Zeit Sauerstoff aus der Faser in die umgebende Argonatmosphäre diffundiert, befindet sich zu Beginn der Bestrahlung nicht mehr die ursprüngliche Sauerstoffmenge aus der vorhergehenden Lagerung in der Faser, so daß die Dauer der ersten Phase in der Entwicklung des Strahlenschadens nicht unmittelbar mit dem Sauerstoffgehalt der vorherigen Lagerungsatmosphäre zusammenhängt.

Offensichtlich wird der Sauerstoff während der Bestrahlung im Material verbraucht, und nachdem der letzte Sauerstoff gebunden ist, fällt die durch den Sauerstoff vermittelte Inaktivierung von Radikalen aus, was zu einer wesentlich stärkeren Absorption führt. Die zum Verbrauch des Sauerstoffs notwendige Dosis beträgt bei Bestrahlung der in Luft vorgelagerten Faser knapp 300 Gy. Bemerkenswert ist, daß der Verbrauch des Sauerstoffs in der Probe solange keinen Einfluß auf die Sättigungskonzentration der Radikale hat, bis er vollständig verbraucht ist; nicht die Sauerstoffkonzentration, sondern allein die Anwesenheit des Sauerstoffs während der Bestrahlung bewirkt den Anstieg in der ersten Phase der Schadensentwicklung. Als Kriterium für die Unterscheidung dieser beiden Bestrahlungsphasen wird die Sauerstoffkonzentration innerhalb der Faser herangezogen:

- Phase 1 : $[O_2] \neq 0$
Phase 2 : $[O_2] = 0$

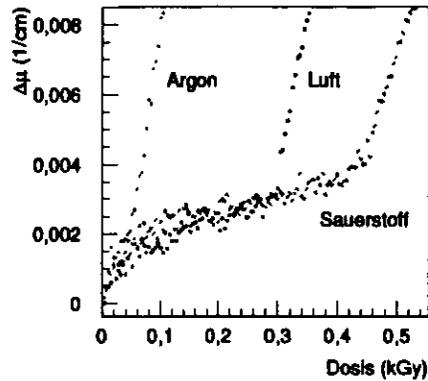


Abbildung 6.7: Erste Phase in der Entwicklung des Strahlenschadens bei Bestrahlung in Argon für drei Proben nach vorheriger Lagerung in verschiedenen Atmosphären ($\dot{D}=42$ Gy/h, $\lambda=460$ nm, $D=8,8$ Gy/h)¹.

6.3.3 Radikalbildung während der Bestrahlung in Luft

Während der Bestrahlung in Luft diffundiert kontinuierlich Sauerstoff in die Faser, wenn durch Reaktionen mit den gebildeten Radikalen die Sauerstoffkonzentration innerhalb der Faser abnimmt. Unter der Voraussetzung, daß die Reaktion mit dem Sauerstoff sehr schnell vonstatten geht, sollte sich die Faser immer im ausgeheilten Zustand befinden. Das ist für das Radikal R_2 sicher nicht der Fall, weil der in der Faser gelöste Sauerstoff bei Bestrahlung in Argon die Ausbildung kurzlebiger Absorptionszentren zwar reduziert, aber nicht vollständig verhindert (Abb. 6.6).

Der Anstieg des Strahlenschadens fällt über das gesamte Spektrum wesentlich flacher aus (Abb. 6.1); der erwartete lineare Zusammenhang zwischen der applizierten Dosis und der Stärke der kurzwelligen Absorption ist im Gegensatz zur Bestrahlung in Argon nicht klar zu beobachten (Abb. 6.10): Die Schadenzunahme pro Dosis ist bei der niedrigen Dosisleistung (8,8 Gy/h) um etwa 40% geringer als bei der hohen Dosisleistung (42 Gy/h). Nur zu Beginn der Bestrahlungen bis zu einer Dosis von ca. 200 Gy stimmen die Anstiege überein. Jedoch unterscheiden sich die beiden verglichenen Fasern, weil die mit niedriger Dosisleistung bestrahlte Faser von außen geschwärtzt ist. Das bedeutet, daß die Diffusion von Sauerstoff aus der Umgebungsatmosphäre in die Faser beeinträchtigt ist. Sobald die Sauerstoffkonzentration in der Faser abnimmt, überwiegt die Diffusion in die Faser hinein. Die verminderte Diffusion durch die Schwärzung der Faser führt dazu, daß innerhalb der Faser größere sauerstofffreie Zonen entstehen. Der Vergleich der beiden Bestrahlungen ist deshalb bis zum Ende der ersten Sättigung für Radikal R_2 in Abbildung 6.8 möglich. Zu diesem Zeitpunkt beträgt die verabreichte Dosis etwa 200 Gy; das entspricht der

¹ Die Messungen der in Argon und Sauerstoff vorgelagerten Proben erfolgte im Wellenlängenbereich von 400 bis 470 nm.

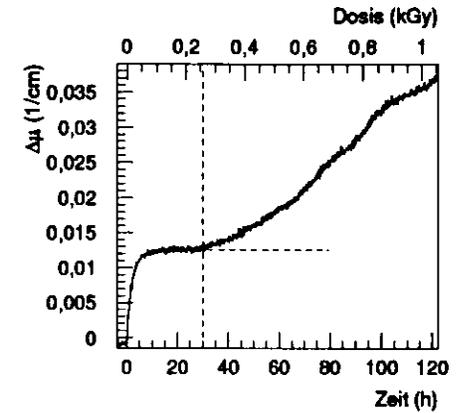


Abbildung 6.8: Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 (geschwärtzt) bei Bestrahlung in Luft bei einer Wellenlänge von 580 nm. Die gestrichelten Geraden dienen zur Bestimmung des Sauerstoffverbrauchs: die waagerechte beschreibt die Sättigungskonzentration, die senkrechte den Zeitpunkt, zu dem die ersten sauerstofffreien Zonen gebildet werden ($D=1,06$ kGy, $\dot{D}=8,8$ Gy/h).

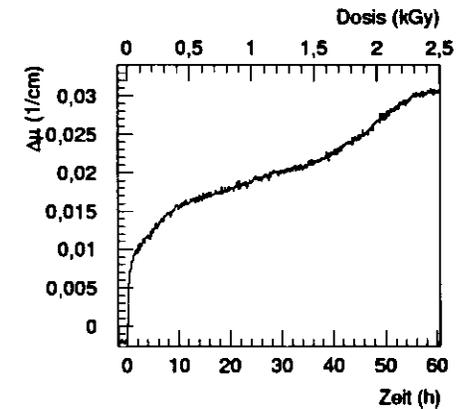
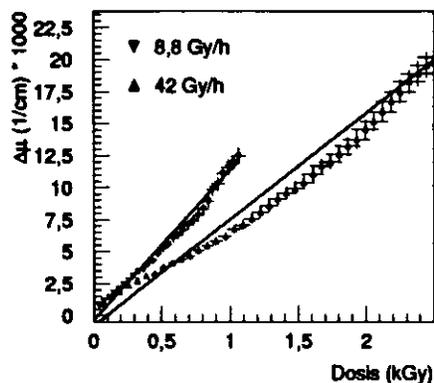


Abbildung 6.9: Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 bei Bestrahlung in Luft bei einer Wellenlänge von 580 nm ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h).

Dosis, bis zu welcher die Anstiege für Radikal R_1 für beide Dosisleistungen parallel verlaufen.

Die Annahme, allein die Anwesenheit und nicht die Konzentration des Sauerstoffs sei für die Radikalentwicklung in der ersten Bestrahlungsphase verantwortlich (Abschnitt 6.3.2), läßt sich auf Bestrahlungen in Luft nicht ohne weiteres übertragen. Eine Sättigung in der Absorption wird bei Bestrahlungen in Luft nur bei niedrigen Dosisleistungen beobachtet (Abb. 6.8); höhere Dosisleistungen (42 Gy/h) zeigen eine stetige Zunahme der Absorption mit unregelmäßiger Geschwindigkeit (Abb. 6.9). Das Ausbleiben einer Sättigung wird erklärbar, wenn die bisherige Annahme, die Absorption sei gleichmäßig über die gesamte Faser verteilt, verworfen wird. Wenn aufgrund des Sauerstoffabbaus innerhalb der Faser der von außen nachdiffundierende Sauerstoff nicht mehr die gesamte Faser erreicht, sind innerhalb der Faser sowohl Zonen mit als auch Zonen ohne Sauerstoff anzutreffen.

Abbildung 6.10: Anstieg des Strahlenschadens von BCF12 bei Bestrahlung in Luft für zwei Dosisleistungen bei einer Wellenlänge von 420 nm. Die mittlere Steigung beträgt für die niedrige Dosisleistung $11,7 \text{ MGy}^{-1}\text{cm}^{-1}$ und für die hohe Dosisleistung $8,3 \text{ MGy}^{-1}\text{cm}^{-1}$.



Die Absorption zeigt dann mindestens solange keine Sättigung, bis die räumliche Verteilung des Sauerstoffs über einen längeren Zeitraum unverändert bleibt.

Sauerstofffreie Zonen entstehen in der Mitte der Faser, weil dort am wenigsten Sauerstoff von außen nachdiffundiert. Nach einer bestimmten Bestrahlungsdauer stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Sauerstoffverbrauch innerhalb der Faser und Diffusion in die Faser hinein ein. Dann wird innerhalb der sauerstofffreien Zonen für instabile Radikale eine höhere Sättigungskonzentration und für stabile Absorptionen ein steilerer Anstieg beobachtet, während in der übrigen Faser eine niedrigere Sättigungskonzentration oder eine kleinere Steigung vorliegt. Bei Ausbildung dieser Zonen ändert sich die Steigung der Absorptionsentwicklung, sie nimmt zu. Diese Steigungsänderung kann zur Bestimmung derjenigen Dosis herangezogen werden, die zum Verbrauch des Sauerstoffs innerhalb der Faser notwendig ist. Das ist in Abbildung 6.8 durch die gestrichelten Geraden dargestellt. Die senkrechte Gerade bestimmt den Zeitpunkt, zu dem die ersten sauerstofffreien Zonen in der Mitte der Faser entstehen. Die dazu notwendige Dosis beträgt bei der niedrigen Dosisleistung ($8,8 \text{ Gy/h}$) etwa 260 Gy . Für die hohe Dosisleistung wird diese erste Sättigung nicht erreicht, weil bei einer höheren Dosisleistung die Sättigungskonzentration erst nach einer größeren verabreichten Dosis erreicht wird (vgl. Abb. 6.5, S. 47 und Gl. 5.9, S. 32). Die Reaktionskonstante ist umgekehrt proportional zur Wurzel aus der Dosisleistung, wenn die Absorption als Funktion der Dosis dargestellt wird. Vor Erreichen der Sättigungskonzentration treten aber bereits in der Mitte der Faser die ersten sauerstofffreien Zonen auf, die einen steileren Anstieg der Absorption verursachen.

Für die im vorigen Abschnitt beschriebene Bestrahlung in Argon mit einer Dosisleistung von 42 Gy/h betrug die zum Sauerstoffverbrauch notwendige Dosis knapp 300 Gy . Diese Faser enthielt aber aufgrund der Bestrahlung in Argon weniger gelösten Sauerstoff, so daß eine kleinere Dosis für den Verbrauch erwartet wird. Hier tritt möglicherweise ein Dosisleistungseffekt auf.

6.4 Zeitliche Entwicklung nach der Bestrahlung

6.4.1 Ausheilung in Argon

Nach Ende der Bestrahlung in Argon ist nur eine teilweise rasche Ausheilung der Absorption zu beobachten; die weitere Ausheilung geht sehr langsam vonstatten. Hat die Bestrahlung unter völligem Sauerstoffabschluß stattgefunden, wird für das Radikal R_1 kaum Ausheilung beobachtet. Frühere Messungen an SCSN38 zeigen für den Strahlenschaden bei Lagerung in Stickstoff für diese Absorptionszentren keine Ausheilung über einen Zeitraum von vier Monaten [Biç92].

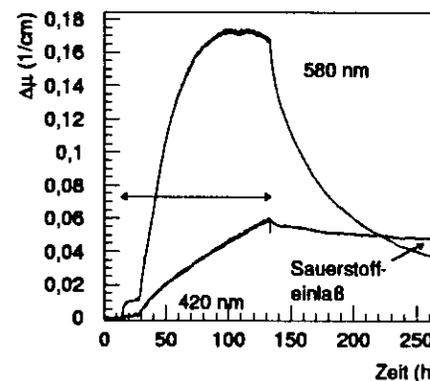


Abbildung 6.11: Anstieg und Abfall der Absorption in BCF12 bei Bestrahlung in Argonatmosphäre mit anschließender Ausheilung durch Sauerstoffzufuhr bei Wellenlängen von 420 nm und 580 nm . Die Gesamtdosis betrug $1,26 \text{ kGy}$ bei einer Dosisleistung von $10,5 \text{ Gy/h}$; der Pfeil (+) markiert die Bestrahlungszeit.

Für Radikal R_2 tritt in Argon sofort nach Bestrahlungsende eine schnelle Ausheilung ein (Abb. 6.11). Die Geschwindigkeit der Ausheilung läßt zwar rasch nach; 70 Stunden nach Bestrahlungsende ist jedoch noch eine deutliche Ausheilung zu beobachten.

6.4.2 Ausheilung unter Sauerstoffeinfluß

Unter Sauerstoffabschluß ist R_1 bei einer Dosis bis zu $2,5 \text{ kGy}$ stabil. Wird nach Bestrahlungsende Sauerstoff zugeführt, zeigt sich eine sehr schnelle Ausheilung auf einen anscheinend permanenten Endschaten (Abb. 6.11 und 6.12). Dabei bleibt ein breitbandiger Schaden zurück, der aufgrund des horizontalen Verlaufs keinem Absorptionszentrum zugeordnet werden kann. Nach Bestrahlung in Luft (Abb. 6.30, S. 67) zeigt sich jedoch eine langsamere Ausheilung für Radikal R_2 , weshalb nach Beendigung der Sauerstoffdiffusion der permanente Endschaten noch nicht erreicht ist.

Ein anderes Ausheilungsverhalten zeigt sich nach Bestrahlung in Luft (Abb. 6.13). In sehr kurzer Zeit findet die Ausheilung des Radikals R_1 statt; zurück bleibt nur der permanente Schaden, dessen Entstehung sich schon zu Beginn der Bestrahlung erfassen läßt. Die Steigung während der ersten 35 Stunden der Bestrahlung

beträgt $(6,8 \pm 0,3) \text{ cm}^{-1} \text{ MGy}^{-1}$ und führt nach einer Dosis von 2,5 kGy auf einen permanenten Schaden von $(0,017 \pm 0,001) \text{ cm}^{-1}$. Erst nach diesen ersten 35 Stunden Bestrahlung beginnt eine deutliche Produktion von Radikal R_1 , das in Anwesenheit von Sauerstoff nicht beobachtet wird. Die ersten sauerstofffreien Zonen bilden sich demnach bei Bestrahlung mit einer Dosisleistung von 42 Gy/h nach einer Dosis von etwa 1,5 kGy aus.

Dem widerspricht die Beobachtung während der Bestrahlung mit einer Dosisleistung von 8,8 Gy/h (Abb. 6.8). Dort wurden erste Effekte eines Sauerstoffabbaus bereits für eine Dosis von 260 Gy nachgewiesen. Dieser Nachweis erfolgte mit der Absorption von Radikal R_2 , das bei Fehlen des Sauerstoffs in wesentlich höherer Konzentration vorliegt und deshalb einen sehr empfindlichen Nachweis des Sauerstoffverbrauches ermöglicht.

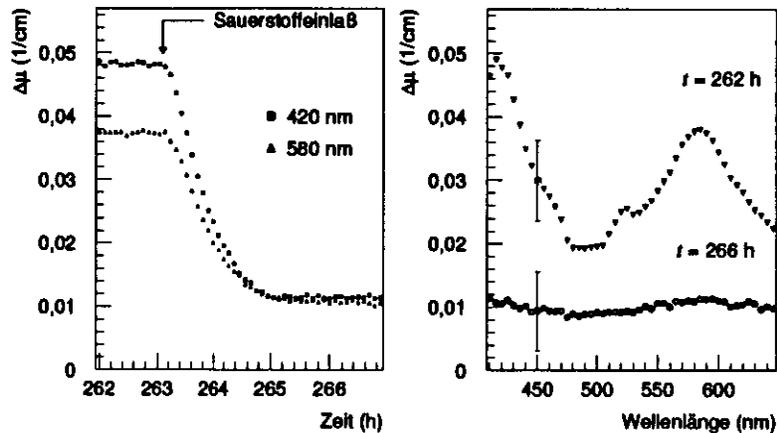


Abbildung 6.12: Die Zuführung von Sauerstoff führt durch Sauerstoffdiffusion zu einer sehr schnellen Abnahme der Absorption; die Diffusion ist in etwa zwei Stunden vollständig abgeschlossen ($D=1,26 \text{ kGy}$, $\dot{D}=10,5 \text{ Gy/h}$). In der rechten Abbildung sind bei $\lambda=450 \text{ nm}$ die systematischen Fehler der Langzeitstabilität enthalten.

Deutlich anders als im vorigen Abschnitt beschrieben verhält sich Radikal R_2 . Während die Sauerstoffzufuhr nach einer Bestrahlung in Argon eine sehr schnelle Ausheilung auf den permanenten Schaden verursacht, wird nach Bestrahlung in Luft ein wesentlich längerer Ausheilungsprozeß beobachtet. Die Anwesenheit von Sauerstoff während der Bestrahlung verlängert die Lebensdauer des Radikals R_2 .

Abbildung 6.13: Entwicklung des Strahlenschadens von BCF12 während und nach Bestrahlung in Luft. Der lineare Anstieg der Absorption um 420 nm während der ersten 35 Stunden der Bestrahlung führt mit einer Steigung von $6,8 \text{ cm}^{-1} \text{ MGy}^{-1}$ auf den permanenten Schaden. Der systematische Fehler der Langzeitstabilität ist für zwei Meßpunkte eingezeichnet ($D=2,5 \text{ kGy}$, $\dot{D}=42 \text{ Gy/h}$).

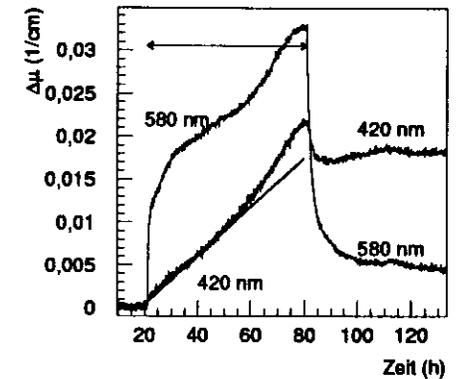
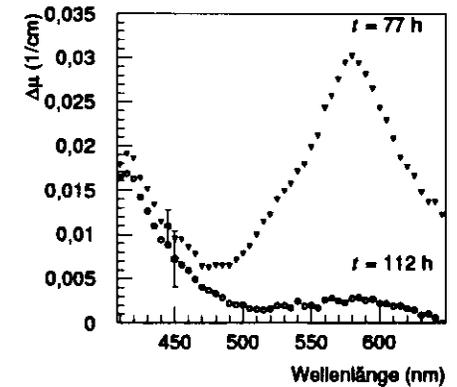


Abbildung 6.14: Spektraler Verlauf der Absorption zum Ende der Bestrahlung und nach dem Ausheilungsprozeß ($D=2,5 \text{ kGy}$, $\dot{D}=42 \text{ Gy/h}$).



6.5 Kinetik der Radikalentwicklung

6.5.1 Entwicklung in Argon

Kinetik der ersten Bestrahlungsphase mit gelöstem Sauerstoff

Die primäre Produktion von Radikalen im BCF12 hängt für jede Radikalsorte von der Dosisleistung nach Gleichung 5.1 ab.

Zu Beginn der Bestrahlung zeigt sich ein linearer Anstieg des Strahlenschadens mit der Dosis, weil noch keine Rekombinationen stattfinden: Die Bestrahlung erzeugt unabhängig von der Dosisleistung neben der permanenten Absorption eine bestimmte Anzahl von Radikalen pro absorbiert Dosis. Erst wenn die gebildeten Radikale abgebaut werden, tritt eine Änderung der Zahl von absorbierenden Radikalen ein. Der lineare Anstieg ermöglicht nach Gleichung 5.12 die Bestimmung des Produktes ($\sigma(\lambda) \cdot g_n \cdot \rho = \Sigma(\lambda)$) als Funktion der Wellenlänge und ist damit ein Maß für den Wirkungsquerschnitt der Radikale mit dem absorbierten Licht. Der Anstieg verläuft für alle Bestrahlungen ähnlich; Abb. 6.15 enthält den gemittelten Anstieg für Bestrahlungen in Argon und in Luft mit Dosisleistungen zwischen 7,4 und 42 Gy/h. Dabei ist ein deutliches Maximum um 580 nm zu sehen; die Abbildung enthält die permanente Absorption und die Absorption von Radikal R_2 , weil von einer gleichzeitigen Produktion von Beginn der Bestrahlung an ausgegangen werden muß. Radikal R_1 wird während der ersten Bestrahlungsminuten nicht entstehen, weil in allen Fasern zu Beginn der Bestrahlung Sauerstoff anwesend war. Dennoch zeigt sich besonders für die langwellige Absorption ein Unterschied in beiden Anstiegen. Die anfängliche Produktion von Radikal R_1 wird durch die Sauerstoffkonzentration in der Faser beeinflusst.

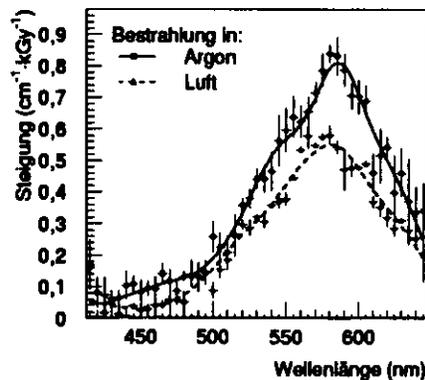


Abbildung 6.15: Mittlere Steigung in der Zunahme des Strahlenschadens zu Beginn der Bestrahlung in Luft und Argon als Funktion der Wellenlänge, ermittelt aus den ersten 20 Minuten der Bestrahlungen; die Dosisleistungen betragen für die Bestrahlungen in Luft 8,8 und 42 Gy/h und für die Bestrahlungen in Argon 7,4 bis 42 Gy/h.

Der Wirkungsquerschnitt für die permanente Absorption läßt sich zu Beginn der ersten Bestrahlungsphase nur unzureichend bestimmen. Dies liegt zum einen an der niedrigen Schadenzunahme in diesem Wellenlängenbereich, zum anderen aber auch

an der Überlagerung mit dem Anstieg von Radikal R_2 . Die Abbildung 6.17 zeigt die Anstiege für beide Wellenlängen. Zu Beginn der Bestrahlung ist bei 420 nm ein etwas steilerer Anstieg in der Absorption zu erkennen als zu späteren Zeitpunkten.

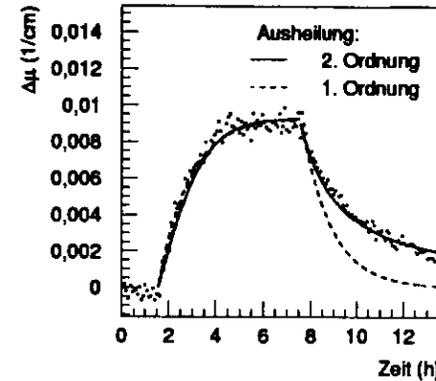
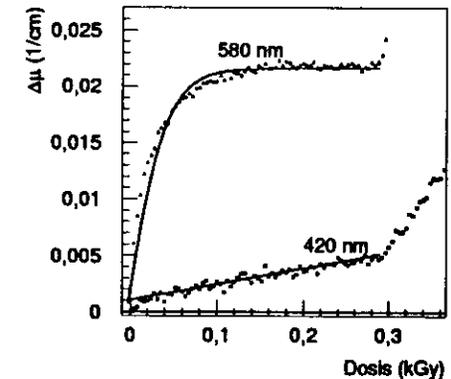


Abbildung 6.16: Identifikation der Kinetik der ersten Bestrahlungsphase nach Bestrahlung in Argon: gezeigt ist der Anstieg des Strahlenschadens bei 580 nm während der Bestrahlung mit der Anpassung und die Übertragung der gefundenen Parameter auf die Ausheilungsphase. Die Ausheilung wird durch einen Ansatz zweiter Ordnung mit den Parametern $\kappa_2 = (31 \pm 6) \text{ kGy}^{-1} \text{ h}^{-1}$ und $\Sigma_2 = (550 \pm 100) \text{ cm}^{-1} \text{ MGy}^{-1}$ (s. Anhang A.3) richtig beschrieben ($D=50 \text{ Gy}$, $\dot{D}=8,4 \text{ Gy/h}$).

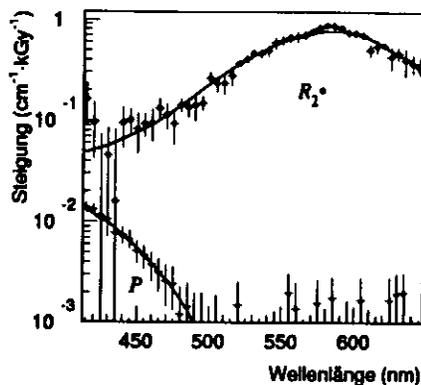
Abbildung 6.17: Anstieg des Strahlenschadens bei 420 nm und 580 nm; in der ersten Bestrahlungsphase in Argon ist die Ausbildung kurzlebiger Radikale mit einer Absorption um 420 nm schwach angedeutet ($\dot{D}=42 \text{ Gy/h}$); nach sehr kurzer Zeit dominiert jedoch für diese Absorption der lineare Anstieg, der durch stabile Absorptionszentren verursacht wird (mit: $\kappa_2 = (21 \pm 4) \text{ kGy}^{-1} \text{ h}^{-1}$, $\Sigma_2^{580 \text{ nm}} = (483 \pm 90) \text{ cm}^{-1} \text{ MGy}^{-1}$).



Die kurzwellige Absorption ist offensichtlich stabil, was sich im konstanten Anstieg des Strahlenschadens bei 420 nm zeigt; die Absorption um 580 nm, verursacht durch Radikal R_2 , zeigt einen deutlichen Sättigungseffekt, der durch den Abbau gebildeter Radikale verursacht wird: mit zunehmender Bestrahlungszeit wächst die Zahl der Radikale und damit auch die Zahl an Rekombinationen, bis Produktionsrate und Rekombinationsrate im Gleichgewicht sind. Dieser Radikalabbau wird durch eine Reaktion zweiter Ordnung beschrieben (Abb. 6.16), was für kleine Dosisleistungen (4 Gy/h) bei Bestrahlung in Luft bereits nachgewiesen wurde [WWB*95].

Eine Trennung der verschiedenen Absorptionen ist möglich, wenn die einzelnen Kinetiken bekannt und unterscheidbar sind. Das ist für die kurzwellige Absorption

Abbildung 6.18: Mittlere Steigung in der Zunahme des Strahlenschadens in der ersten Bestrahlungsphase in Argon für $R_2\cdot$ und permanente Absorption P als Funktion der Wellenlänge. Die Identifikation von der permanenten Absorption erfolgt während der Sättigung in der Absorption von Radikal $R_2\cdot$ (Abb. 6.17). Radikal $R_1\cdot$ taucht wegen der Anwesenheit von Sauerstoff nicht auf.



zu den Zeiten möglich, zu denen Radikal $R_2\cdot$ Sättigung zeigt; der lineare Anstieg ist dann ausschließlich durch Radikal $R_1\cdot$ und durch die für den permanenten Schaden verantwortlichen Absorptionszentren P bestimmt. Dies ist beispielsweise für die in Abbildung 6.17 dargestellte Schadensentwicklung im Dosisbereich zwischen 0,15 und 0,25 kGy möglich: Es zeigt sich ein linearer Anstieg des Strahlenschadens um 420 nm mit der Dosis über einen längeren Zeitraum, wie es für stabile Absorptionszentren erwartet wird, während die Absorption um 580 nm über denselben Zeitraum unverändert bleibt. Da während der ersten Bestrahlungsphase gelöster Sauerstoff anwesend ist, wird für die Absorption um 420 nm keine Ausheilung nach Bestrahlungsende erwartet, weil der Sauerstoff bereits während der Bestrahlung mit den Radikalen $R_1\cdot$ reagiert und so eine maximale Ausheilung auf den permanenten Schaden bewirkt (s. Abschnitt 6.5.2).

Die Trennung der permanenten Absorption von der Absorption des Radikals $R_2\cdot$ in der ersten Bestrahlungsphase zeigt Abbildung 6.18: Die Produktion permanenter Absorption ist verglichen mit der Produktion von Radikal $R_2\cdot$ zu Beginn der Bestrahlung nur sehr schwach ausgeprägt. Das Absorptionsmaximum von Radikal $R_2\cdot$ liegt zwar um 580 nm, die Absorption reicht aber bis zu kleinen Wellenlängen und überlagert sich mit der kurzwelligen Absorption und ist zu Beginn der Bestrahlung auch in diesem Wellenlängenbereich deutlich stärker als die permanente Absorption.

Da der Verbrauch des Sauerstoffs während der ersten Phase offensichtlich keinen Einfluß auf die Schadensentwicklung nimmt (Abschnitt 6.3.2), kann die erste Phase bei Bestrahlung in Argon mit einer Bestrahlung in Luft gleichgesetzt werden. Einschränkungen dazu werden im Abschnitt 6.3.3 genannt. Die Reaktion des Sauerstoffs mit den Radikalen führt zu einem Abbau des Sauerstoffs; wenn dieser vollständig umgesetzt ist, beobachtet man den durch Gleichung 5.3 bzw. 5.9 beschriebenen Anstieg gemäß einer Reaktionskinetik zweiter Ordnung.

Für das Zustandekommen der ersten Bestrahlungsphase wird ein Modell [Wic96] benötigt, das eine Sättigungskonzentration liefert, die von der Sauerstoffkonzentration im Material unabhängig ist.

Die in Abschnitt 6.5.1 beschriebenen Reaktionen liefern für Radikal $R_2\cdot$ noch keine Sättigung, die von der Sauerstoffkonzentration unabhängig ist.

Dazu wird eine konzentrationsabhängige Reaktionskonstante eingeführt. Grundlage dafür bietet ein „Käfigmodell“, das ein bestrahltes Volumen in kleine Teilvolumina (Käfige) einteilt. Befinden sich in einem solchen Käfig zwei Radikale, reagieren sie sofort miteinander. Innerhalb eines Käfigs gilt für die Lebensdauer τ der Radikale: $\tau_{(R_2+R_2)} \ll \tau_{R_2}$; isolierte Radikale haben eine relativ lange Lebensdauer. Ein isoliertes Radikal wird abgebaut, wenn innerhalb des Käfigs durch die Bestrahlung ein zweites Radikal induziert wird oder ein Radikal durch Übertragungsreaktionen (Propagation) in den Käfig gelangt. Die maximale Sättigungskonzentration ist erreicht, wenn jeder zweite Käfig mit einem Radikal besetzt ist: Zwei neu induzierte Radikale treffen im Mittel auf einen unbesetzten und einen besetzten Käfig; dabei reagiert das zweite Radikal mit dem schon vorhandenen im Käfig, während das erste bestehen bleibt. Die Radikalanzahl hat sich dabei nicht verändert.

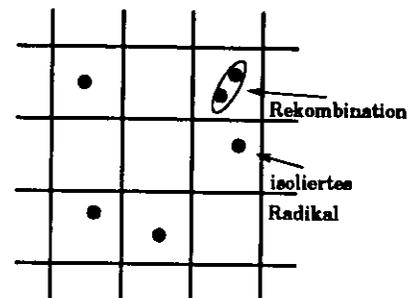


Abbildung 6.19: Schematische Darstellung des Käfigmodells: zwei Radikale in einem Käfig reagieren sofort, isolierte Radikale sind langlebiger und rekombinieren über einen Prozeß zweiter Ordnung.

Die Schadensentwicklung zeigt bei diesem Ansatz ein anderes Verhalten als ein Ansatz mit nur einem kinetischen Prozeß zweiter Ordnung. Im Abschnitt 5.2 ist der Einfluß des Käfigmodells auf die zeitliche Entwicklung der Absorption beschrieben. Die Lösung der zugehörigen Differentialgleichung lautet für den instabilen Anteil der Absorption $\widetilde{\Delta\mu}(\lambda)$ (Gl. 5.18 u. 5.20):

$$\widetilde{\Delta\mu}(\lambda, t) = \widetilde{\Delta\mu}_S(\lambda) \cdot \frac{1 - e^{-\beta t}}{1 + \epsilon + \epsilon \cdot e^{-\beta t}} \quad (6.1)$$

Die Parameter ϵ und β lassen sich aus den Steigungen der Absorption zu Beginn der Bestrahlung und unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung sowie der erreichten Absorption in der Sättigung nach Gleichungen 5.23 und 5.24 bestimmen.

Für die Schadensentwicklung, die in Abbildung 6.20 dargestellt ist, ergibt sich für den Parameter ϵ ein Wert von 2,1. Die Zeitkonstante β beträgt 1,16 1/h und die Reaktionskonstante k/σ ergibt sich zu 52 cm/h. Im Vergleich dazu liefert die direkte Anpassung einer Funktion nach Gleichung 5.32 einen Wert von 55 cm/h. Die Anpassung ermöglicht insbesondere eine bessere Beschreibung des Beginns der ersten Phase der Bestrahlung. Bei einer reinen Rekombination über einen Prozeß zweiter Ordnung sind Anstieg und Abfall zu Beginn der beiden Phasen vom Betrag gleich groß. Die deutlich unterschiedlichen Steigungen in Abbildung 6.20 lassen sich auf diese Weise erklären.

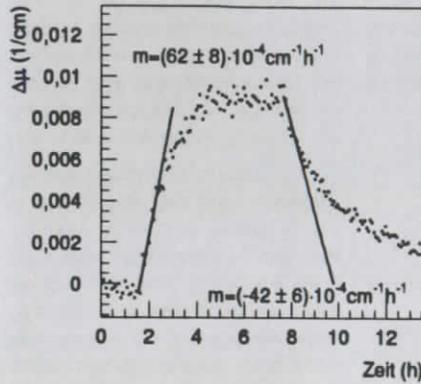


Abbildung 6.20: Steigung zu Beginn und unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung während der ersten Bestrahlungsphase bei Bestrahlung in Argon bei einer Wellenlänge von 580 nm ($D=50$ Gy, $\dot{D}=8,4$ Gy/h, $\lambda=580$ nm)

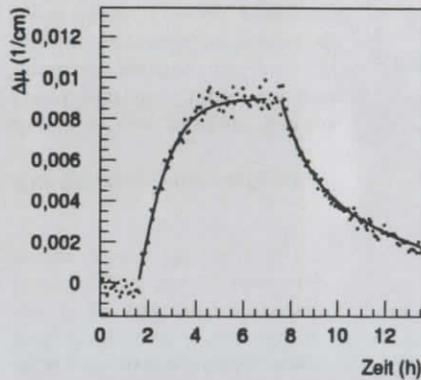


Abbildung 6.21: Die aus den Steigungen zu Beginn der Bestrahlung und unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung gewonnenen Parameter liefern eine gute Beschreibung der Schadensentwicklung nach dem Käfigmodell

Kinetik der zweiten Bestrahlungsphase

Nach dem Abbau des letzten gelösten Sauerstoffs in der Faser sinken die Reaktionskonstanten k_n (Gleichung 5.3), weil die Rekombination mit Sauerstoff nicht mehr möglich ist. Deshalb wird wie in Abbildung 6.11 dargestellt ein weiterer Anstieg der Absorption mit einer wesentlich höheren Sättigungskonzentration für das Radikal $R_2\cdot$ beobachtet. Wie für den ersten Anstieg (Abb. 6.16) läßt sich für den zweiten Anstieg die mögliche Reaktionsordnung aus dem Vergleich von Absorptionsanstieg und -abfall bestimmen. Auch für die zweite Bestrahlungsphase ergibt sich eine Kinetik gemäß einer Reaktion zweiter Ordnung (Abb. 6.22). Damit läßt sich der zweigeteilte Anstieg in der Absorption von Radikal $R_2\cdot$ mit einer Änderung der Reaktionskonstanten κ_2 beschreiben: bei unveränderter Radikalproduktion wird die Sättigungskonzentration nach Gleichung 5.6 von der Wurzel der Reaktionskonstanten bestimmt. Der plötzliche Anstieg in der Absorption wird somit durch einen

beachtlichen Sprung in der Reaktionskonstanten verursacht: Wie in Abb. 6.22 dargestellt, sinkt die Reaktionskonstante nach dem Verbrauch des Sauerstoffs plötzlich um den Faktor 320. Die Reaktionskonstante κ_2 hat in der Anpassung der ersten Bestrahlungsphase einen Wert von $(28 \pm 6) \text{ h}^{-1} \text{ kGy}^{-1}$ und in der zweiten Phase von $(0,087 \pm 0,03) \text{ h}^{-1} \text{ kGy}^{-1}$, was einem Sprung der Reaktionskonstanten um den Faktor 320 entspricht.

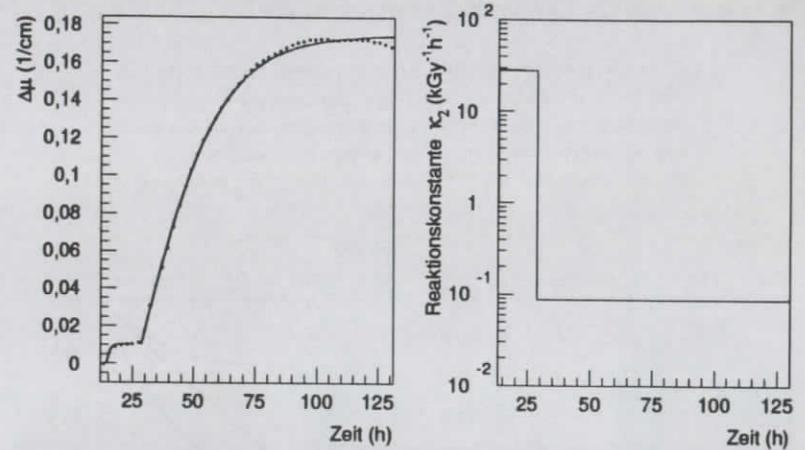
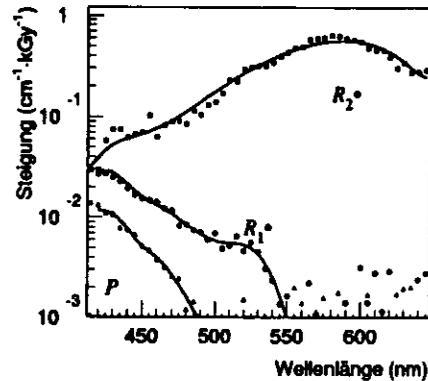


Abbildung 6.22: Nach dem Verbrauch des Sauerstoffs fällt die Reaktionskonstante sprunghaft um den Faktor 320. Die rechte Abbildung zeigt die Reaktionskonstanten für die beiden Bestrahlungsphasen in der linken Abbildung, wenn von einem Prozeß zweiter Ordnung ausgegangen wird (nach Gleichung 5.7) ($\dot{D}=10,5$ Gy/h, $D=1,26$ kGy).

Gestützt wird diese Beschreibung der beiden Bestrahlungsphasen durch die Beobachtung, daß die Radikalproduktion nach der ersten Sättigung unverändert fort-schreitet (Abb. 6.22): Die Steigung in der Schadensentwicklung zu Beginn der zweiten Bestrahlungsphase ist der Steigung zu Beginn der ersten Phase sehr ähnlich. Die Steigung zu Beginn der zweiten Phase fällt um 580 nm etwa 10 % flacher aus; hierbei ist zu berücksichtigen, daß die Steigungsbestimmung zu einem Zeitpunkt erfolgt, an dem bereits Radikale gebildet sind, somit auch Rekombinationen der Anstieg bereits abflachen. Ein deutlicher Unterschied zeigt sich für die kurzweilige Absorption, weil nach dem Verbrauch des Sauerstoffs das Radikal $R_1\cdot$ nicht mehr abgebaut wird. In dieser Phase der Bestrahlung entsteht im kurzweiligen Bereich neben der permanenten Absorption die durch Radikal $R_1\cdot$ verursachte Absorption. Das äußert sich in einer stärkeren Absorptionzunahme in diesem Wellenlängenbereich mit einem verbreiterten Absorptionsspektrum (Abb. 6.23).

Abbildung 6.23: Mittlere Steigung in der Zunahme des Strahlenschadens zu Beginn der zweiten Bestrahlungsphase in Argon für beide Radikale $R_1\cdot$ und $R_2\cdot$ sowie die permanente Absorption P als Funktion der Wellenlänge ($\dot{D}=10,5$ Gy/h, $D=1,26$ kGy). Die Identifikation von $R_1\cdot$ und P erfolgt während der Sättigung in der Absorption von Radikal $R_2\cdot$; während dieser Zeit erfolgt die Absorptionzunahme ausschließlich über Radikal $R_1\cdot$ und P . Der Anteil von P ist während der ersten Bestrahlungsphase bestimmt worden (Abb. 6.18).



Kinetik ohne Sauerstoffeinfluß

Der im vorigen Abschnitt beschriebene Einfluß des Sauerstoffs auf die Reaktionskonstante, die den Radikalabbau beschreibt, verdeutlicht die starke Abhängigkeit der gemessenen Absorption von den atmosphärischen Bedingungen. Schon sehr kleine Sauerstoffmengen bewirken einen extremen Anstieg der Zerfallskonstanten. Gleichzeitig können schon sehr kleine Bereiche einer Faser, die nicht mit Sauerstoff versorgt werden, eine deutliche Absorption bewirken, weil in diesen Bereichen eine wesentlich kleinere Zerfallsrate auftritt.

Um eine quantitative Analyse der Radikalentwicklung vornehmen zu können, muß sichergestellt sein, daß sich die gesamte Faser in demselben Zustand befindet. Das ist für den Fall möglich, daß sich in der Faser kein Sauerstoff befindet. Dieser Zustand läßt sich an zwei Beobachtungen festmachen: Wenn zum einen die erste Bestrahlungphase mit einer niedrigen Sättigungskonzentration ausbleibt, befindet sich in einer Faser kein gelöster Sauerstoff; wenn dann kein Sauerstoff von außen in die

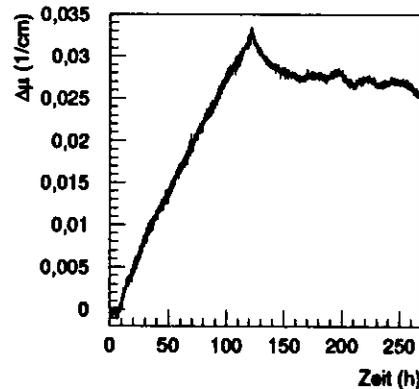


Abbildung 6.24: Absorption bei einer Wellenlänge von 420 nm während und nach Bestrahlung ohne Einfluß von Sauerstoff ($D=0,89$ kGy, $\dot{D}=7,4$ Gy/h).

Faser gelangen kann, ist von einer sauerstofffreien Bestrahlung auszugehen. Zum anderen wird eine Ausheilung von Radikal $R_1\cdot$ nur bei Anwesenheit von Sauerstoff beobachtet; kann nach einer Bestrahlung Sauerstoff in die Faser diffundieren, geht durch den Radikalabbau auch die Absorption im Wellängenbereich um 420 nm sichtbar zurück. Ein permanenter Schaden mit nur sehr geringer Ausheilung (Abb. 6.24) wird bei Abwesenheit von Sauerstoff beobachtet. Die Anwesenheit von Sauerstoff in gebundenem Zustand wie zum Beispiel in Peroxiradikalen ist aber für den beschriebenen Zustand fehlender Ausheilung nicht auszuschließen.

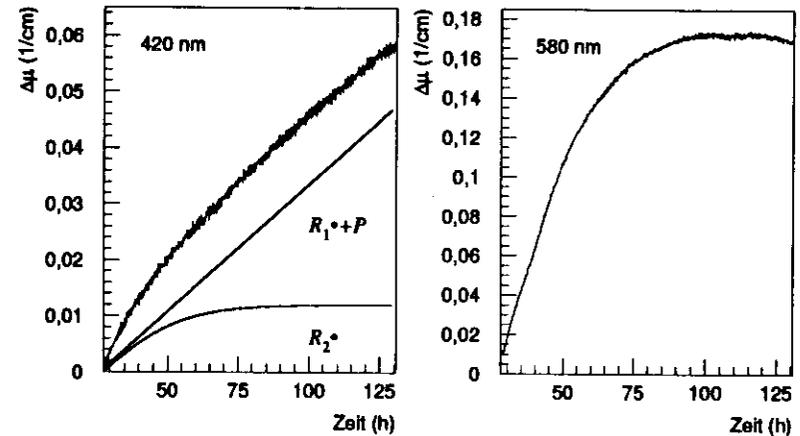


Abbildung 6.25: Entwicklung des Strahlenschadens ($\lambda=420$ nm bzw. 580 nm) während der Bestrahlung in Argonatmosphäre. In der linken Abbildung sind der Anteil für die kurzlebige Absorption ($R_2\cdot$) und der lineare Anstieg ($R_1\cdot$ und P) getrennt dargestellt ($D=1,26$ kGy; $\dot{D}=10,5$ Gy/h).

Der Anstieg in der Absorption um 420 nm zu Beginn der Bestrahlung geht in einen linearen Anstieg über (Abb. 6.25). Der steilere Anstieg zu Beginn ist auf ein zweites Radikal zurückzuführen, das schon während der Bestrahlung rekombinieren kann; ein solches Verhalten ist für das Radikal $R_2\cdot$ um 580 nm in Abbildung 6.25 sehr deutlich zu sehen. Diese Überlappung der beiden Absorptionsbereiche wurde im Abschnitt über Bestrahlungen mit Beteiligung von Sauerstoff (S. 56) beschrieben. Der Sättigungseffekt in der Absorption um 580 nm ist auf ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Zerfall von Radikalen zurückzuführen.

Die zeitliche Entwicklung im Absorptionsverhalten wird ausschließlich von einem Prozeß zweiter Ordnung bestimmt. Ein möglicher Anteil an Zerfällen nach dem Käfigmodell ließe sich durch einen Vergleich der Steigungen zu Beginn und direkt nach Beendigung der Bestrahlung für den Fall ermitteln, daß der Abfall nach Bestrahlungsende aus der Sättigung erfolgt. Der Vergleich beider Steigungen für diesen

Fall (Abb. 6.26) zeigt betragsmäßige Übereinstimmung der beiden Steigungen. Die Größe ϵ (S. 35) ist ein Maß für die maximal erreichbare Sättigungskonzentration und wird für den Fall gleicher Steigungen unendlich groß (Gl. 5.23, S. 36). Die damit erreichbare Sättigungskonzentration $[R_{\text{GS}}]$ (Gl. 5.19, S. 35) ist ebenfalls unendlich groß. Das bedeutet im Käfigmodell eine verschwindende Käfiggröße (Gl. 5.13, S. 34).

Die Entwicklung der Absorption wird (Gl. 5.9 und 5.11) bei Bestrahlung in Argon durch

$$\Delta\mu(\lambda, D) = \Sigma(\lambda) \cdot \sqrt{\frac{D}{\kappa}} \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa}{D}} \cdot (D - D_1)\right)$$

beschrieben, wobei D_1 die Dosis ist, bei welcher der in der Probe gelöste Sauerstoff durch Reaktionen mit Radikalen gebunden ist.

Die Umformung zu

$$\frac{\Delta\mu(\lambda, D)}{\sqrt{D}} = \frac{\Sigma(\lambda)}{\sqrt{\kappa}} \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa}{D}} \cdot (D - D_1)\right) \quad (6.2)$$

ermöglicht eine Darstellung der Absorptionsentwicklung, die unabhängig von der Dosisleistung ist. Die Übereinstimmung der Schadensverläufe (Abb. 6.27) bestätigt diesen Ansatz einer Kinetik zweiter Ordnung.

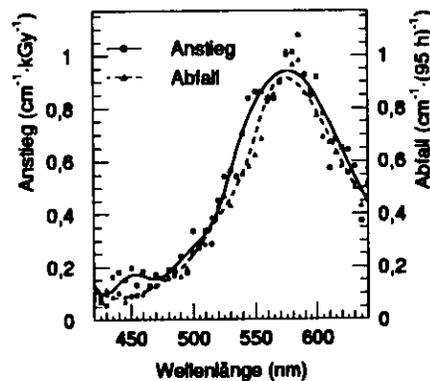


Abbildung 6.26: Steigungen zu Beginn der Bestrahlung in Argon und unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung (aus der Sättigung) ohne Einfluß von Sauerstoff und ohne gelösten Sauerstoff. Beide Steigungen sind vom Betrag gleich; Sättigung und Abfall werden durch dieselbe Reaktion bestimmt ($D=1,26$ kGy, $\dot{D}=10,5$ bzw. 42 Gy/h)

Der Anstieg zu Beginn der Bestrahlung fällt für diese Bestrahlungsbedingungen etwas höher aus als zu Beginn der ersten Bestrahlungsphase in Argon, wenn die Fasern noch gelösten Sauerstoff enthalten (Abb. 6.15). Überraschend ist, daß der Anstieg mit gelöstem Sauerstoff nur wenig flacher ist. Eine schnelle Reaktion mit Sauerstoff sollte hier zu einem deutlich flacheren Anstieg führen. Das läßt den Schluß zu, daß die Radikale R_2 in geringer Konzentration auch bei Anwesenheit von Sauerstoff stabil sind und nur gemäß einer Reaktion zweiter Ordnung miteinander reagieren.

Für die Bestrahlung in Argon können aufgrund der Übereinstimmung der Schadensverläufe die Parameter zur Schadensentwicklung angegeben werden. Die notwendi-

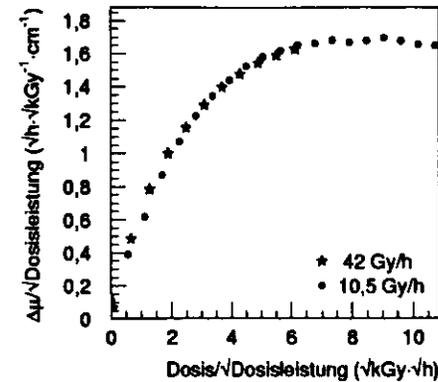


Abbildung 6.27: Bezüglich der Dosisleistung invariante Darstellung der in Abbildung 6.5 gezeigten Schadensverläufe nach Gleichung 6.2. Für die hohe Dosisleistung handelt es sich um die zweite Bestrahlungsphase ohne gelösten Sauerstoff. Durch Normierung mit der Wurzel der Dosisleistung stimmen beide Verläufe überein ($\lambda=580$ nm).

gen Parameter sind unabhängig von der Dosisleistung und beschreiben die Wirkungsquerschnitte der Absorptionszentren mit dem absorbierten Licht. Die tabellierten Werte sind im Anhang (Tabelle A.1, S. 92) aufgeführt. Abbildungen 6.28 und 6.29 zeigen die Anwendung dieser Parameter auf die Schadensentwicklung während und nach der Bestrahlung. Anstieg und Abfall der Absorption werden mit diesen Parametern gut beschrieben. Eine schwache Abweichung vom Modell zeigt sich bei der Ausheilung der kurzwelligen Absorption. Während das Modell von stabilen Radikalen ausgeht, zeigt sich bei diesem Beispiel eine allmähliche Ausheilung dieses Radikals. Diese Ausheilung deutet auf einen geringen Sauerstoffanteil in der Atmosphäre hin.

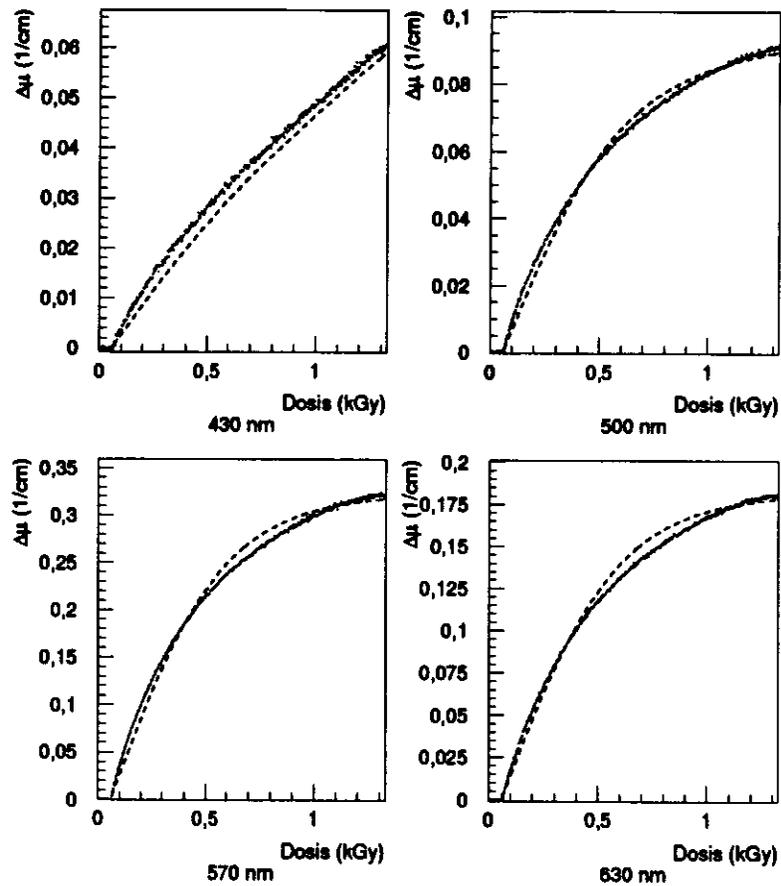


Abbildung 6.28: Anwendung der Parameter auf die Schadensentwicklung von BCF12 bei verschiedenen Wellenlängen für eine Bestrahlung in Argon ($D=1,26$ kGy, $D=42$ Gy/h)

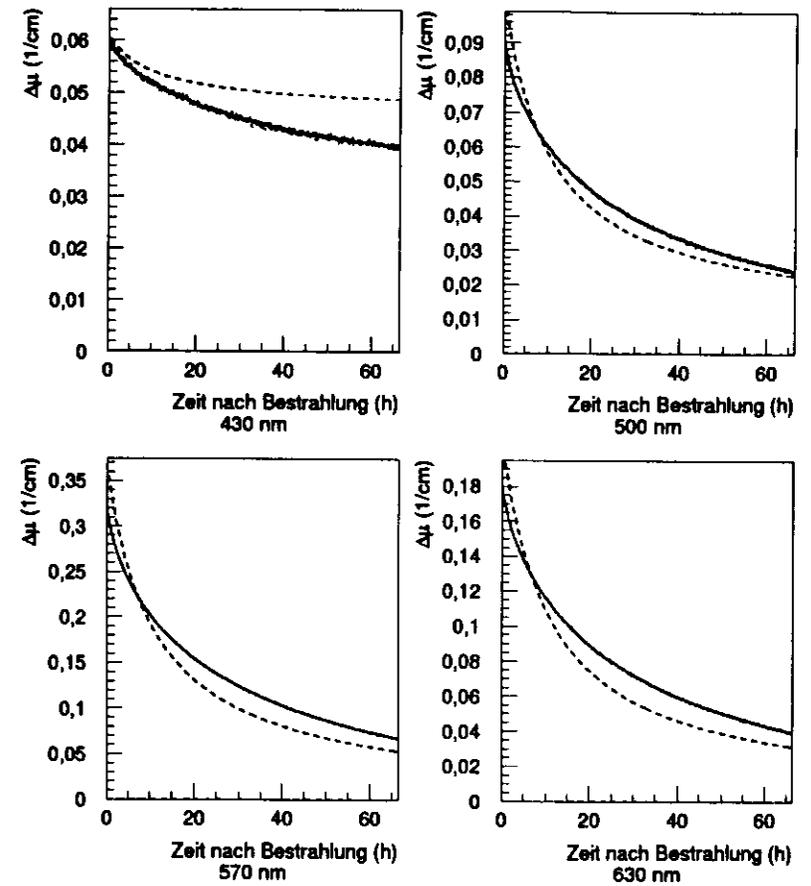


Abbildung 6.29: Anwendung der Parameter auf die Schadensentwicklung von BCF12 im Ausheilungsprozeß bei verschiedenen Wellenlängen nach Bestrahlung in Argon ($D=1,26$ kGy, $D=42$ Gy/h)

6.5.2 Entwicklung in Luft

Bei Bestrahlung in Luft treten zusätzlich zu den oben beschriebenen Reaktionen der Radikalerzeugung und des Radikalabbaus sowie der Ausbildung von Absorptionszentren Diffusionsprozesse von Sauerstoff in die Faser ein. Der Einfluß von Sauerstoff auf die Reaktionsabläufe ist dabei so groß, daß die Diffusion von Sauerstoff die Abläufe in einer Faser stark beeinflussen kann. Für die Entwicklung der Absorption zu Beginn der Bestrahlung zeigt sich deshalb ein flacherer Anstieg als bei Bestrahlung in Argon (Abb. 6.15, S. 55).

Abbildung 6.30: Abfall des Strahlenschadens von BCF12 nach Bestrahlung in Luft ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h). Nach der Ausheilung der Absorption um 420 nm ist die Diffusion von Sauerstoff in die Faser abgeschlossen.

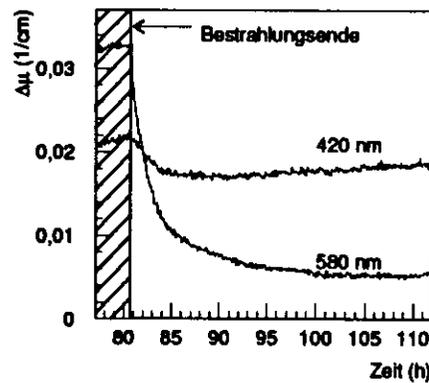
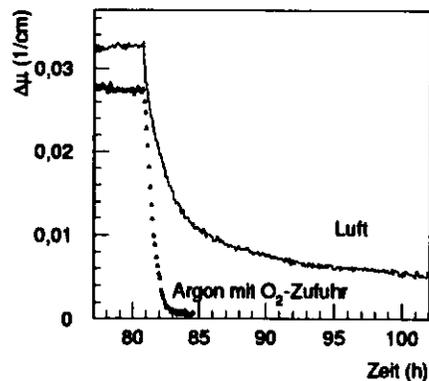


Abbildung 6.31: Die obere Kurve zeigt die Ausheilung ($\lambda=580$ nm) nach Bestrahlungsende in Luft aus der vorherigen Abbildung. ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h). Die Symbole zeigen den Verlauf der Ausheilung nach Bestrahlung und teilweiser Ausheilung in Argon mit anschließender Sauerstoffzufuhr bei derselben Wellenlänge (Abb. 6.11 und 6.12; $D=1,26$ kGy, $\dot{D}=10,5$ Gy/h).

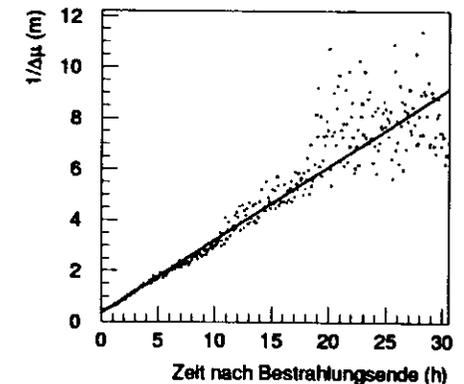


Die Reaktionen mit Sauerstoff führen in der Regel zur Inaktivierung von Absorptionszentren, so daß eine Zunahme der Transmission zu beobachten ist. Die Reaktionen mit Sauerstoff laufen dabei sehr schnell ab. Einen guten Anhaltspunkt für den

Einfluß des Sauerstoffs gibt die Absorption im Wellenlängenbereich um 420 nm. Die Absorptionszentren R_1 sind bei Abwesenheit von Sauerstoff stabil (Abschnitt 6.4) und zerfallen sofort nach Einleitung von Sauerstoff. Aber nicht alle Absorptionszentren lassen sich durch Sauerstoff inaktivieren. Zum einen besteht die Möglichkeit einer permanenten Absorption, zu der auch Moleküle mit gebundenen Sauerstoffatomen beitragen können (z. B. Peroxiradikale); zum anderen treten auch bei Anwesenheit von Sauerstoff kurzlebige Absorptionszentren auf, deren Zerfall nicht durch den Sauerstoff beeinflusst wird. Ein solches Verhalten ist bei Bestrahlung in Luft zu erkennen (Abb. 6.30): Die Absorption um 420 nm heilt in sehr kurzer Zeit durch Reaktionen mit Sauerstoff aus, während die Absorption um 580 nm eine deutlich längere Ausheilzeit aufweist. Nach der Ausheilung der Absorption um 420 nm ist die gesamte Faser mit Sauerstoff durch Diffusion versorgt; die Ausheilung der Absorption um 580 nm dauert etwa fünfmal solange an. Den direkten Vergleich der Ausheilung um 580 nm mit der nach Bestrahlung und teilweiser Ausheilung in Argon mit anschließender Sauerstoffzufuhr zeigt Abbildung 6.31.

Die Ausheilung dieser Absorption läßt sich durch einen Prozeß zweiter Ordnung beschreiben; diese Kinetik läßt sich in der Entwicklung des Kehrwertes der Absorption (Gl. 5.33) erkennen und auf die Ausheilung in Luft übertragen (Abb. 6.32).

Abbildung 6.32: Die Ausheilung um 580 nm (s. Abb. 6.30) wird durch einen Prozeß zweiter Ordnung beschrieben. Als permanenter Schaden wurde ein Wert von $0,004$ cm⁻¹ angesetzt (Gl. 5.33, S. 39; $D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h).



Die minimale Schädigung, die bei Bestrahlung in Luft beobachtet wird, entspricht dem Endschaden nach der letzten Ausheilung. Dieser sollte von der Dosisleistung unabhängig sein. Der Vergleich zeigt bei niedrigerer Dosisleistung einen etwas niedrigeren Endschaden pro Dosis für die kurzweilige Absorption. Die Absorption um 580 nm ist nach der Ausheilung unabhängig von der Dosisleistung (Abb. 6.33).

Angesichts der guten Übereinstimmung der Schadensanstiege von BCF12 und SCSN38 im Wellenlängenbereich um 430 nm für den Anfangsschaden bei Bestrahlung in Argon (Abschnitt 6.3.1, S. 46) bietet sich ein Vergleich der Endschäden für diese beiden Szintillatoren im gleichen Wellenlängenbereich an. Dabei zeigt sich für SCSN38 nach Bestrahlung mit einer hohen Dosisleistung ein niedrigerer Endschaden pro Dosis als für BCF12 nach Bestrahlung mit niedriger Dosisleistung (Tab. 6.1).

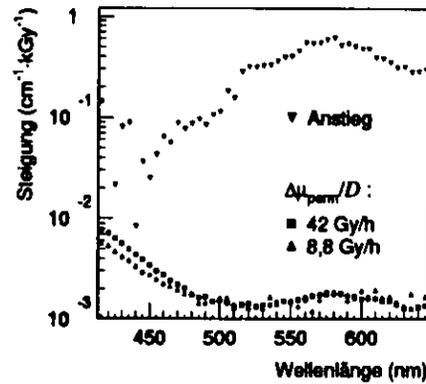


Abbildung 6.33: Der Endscha-
den pro Dosis $\Delta\mu_{perm}/D$ nach
vollständiger Ausheilung in Luft
im Vergleich zum Anstieg der Ab-
sorption zu Beginn der Bestrah-
lung, in der die kurzlebige Ab-
sorption von Radikal R_2 · enthal-
ten ist.

Die erreichten Sättigungen, die in der Absorption von Radikal R_2 · beobachtet wur-
den, sind in Abbildung 6.34 für die Wellenlänge $\lambda=580$ nm zusammenfassend dar-
gestellt. Der verwendete Quotient aus Sättigungsabsorption und Wurzel der Dosis-
leistung beseitigt für eine Kinetik zweiter Ordnung die Dosisleistungsabhängigkeit
der Sättigungsabsorption. Trotz sehr unterschiedlicher Sauerstoffkonzentrationen in
den einzelnen Fasern bei Bestrahlung in Luft bzw. während der ersten Bestrahlungs-
phase in Argon wird die Sättigungskonzentration in erster Linie von der Tatsache
bestimmt, ob überhaupt Sauerstoff in der Faser gelöst ist. Diese Beobachtung gilt
für alle durchgeführten Bestrahlungen, sofern Sättigungen im Absorptionsverhalten
eingetreten sind.

Material	Dosisleistung Gy/h	Endschaden pro Dosis (420 nm) ($\text{cm}^{-1} \cdot \text{MGy}^{-1}$)
BCF12	8,8	6,4
BCF12	42	7,2
SCSN38	1400	1,45

Tabelle 6.1: Vergleich von BCF12 und SCSN38 [Dan96]
bei unterschiedlichen Dosisleistungen. Bei Bestrahlung in Ar-
gon zeigten beide Szintillatoren in diesem Wellenlängenbe-
reich übereinstimmende Schadenswerte (Abschnitt 6.3.1)

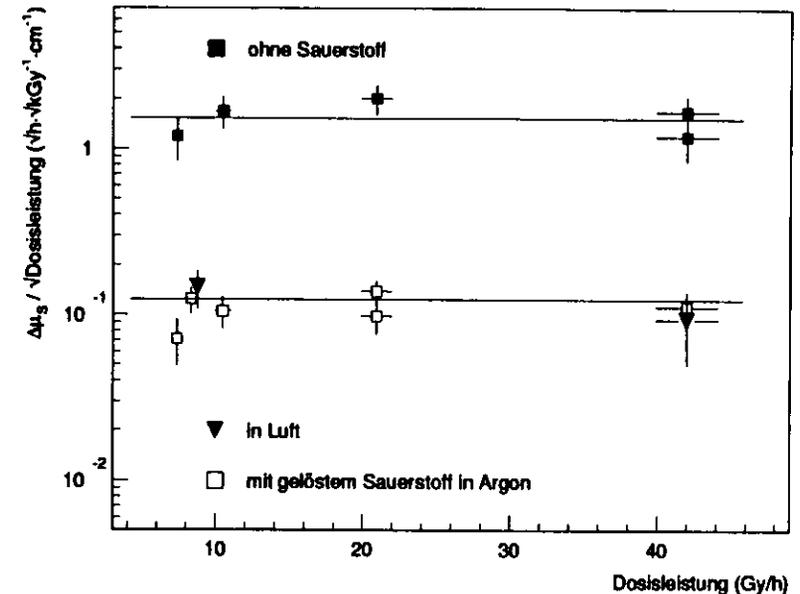


Abbildung 6.34: Die erreichten Sättigungskonzentrationen ($\lambda=580$ nm) sind dem
Modell nach proportional zur Wurzel der Dosisleistung, wenn Rekombinationen nach
einer Reaktion zweiter Ordnung auftreten. Der Quotient aus Sättigungskonzentration
 $\Delta\mu_s$ und Dosisleistung wird hier von der Anwesenheit von Sauerstoff bestimmt.
Die Konzentration an Sauerstoff hat dagegen keinen sichtbaren Einfluß. Der Mit-
telwert der Quotienten ohne Sauerstoff beträgt $(1,53 \pm 0,17) \sqrt{\text{h/kGy}} \cdot \text{cm}^{-1}$ und der
Quotienten mit Sauerstoff $(0,124 \pm 0,03) \sqrt{\text{h/kGy}} \cdot \text{cm}^{-1}$.

6.6 Auswirkungen auf das Fluoreszenzlicht

6.6.1 Einflüsse durch Transmissionseffekte

Neben der Transmission wird während der Bestrahlung das Fluoreszenzlicht registriert, das durch die Bestrahlung im Material entsteht. Das Fluoreszenzlicht wird im Detektor als Signal der nachzuweisenden Teilchen registriert. Absorptionszentren, die Teile des Fluoreszenzlichtes absorbieren, werden dieses Licht auf dem Weg vom Entstehungsort zum Photomultiplier abschwächen. Damit sinkt aus statistischen Gründen die Energieauflösung: Bei gleicher Teilchenenergie werden weniger Photonen nachgewiesen, wodurch die relative Unsicherheit beim Zählen der Photonen steigt.

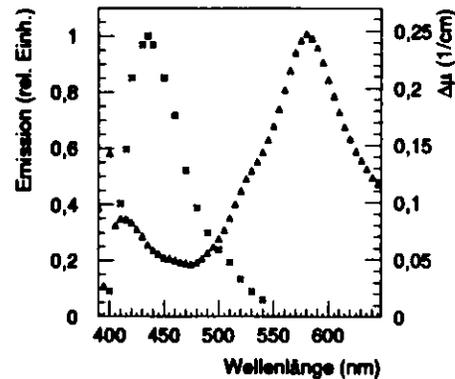


Abbildung 6.35: Das Fluoreszenzlicht (linke Spitze) der Faser BCF12 reicht von 400 bis 550 nm und ist mit der strahlungsbedingten zusätzlichen Absorption (rechte Spitze) überlagert. Die Absorption zeigt BCF12 nach Bestrahlung mit einer Dosis von 2,5 kGy in Argon.

Das mit der Röntgenröhre induzierte Fluoreszenzlicht steht nur während der Bestrahlungszeit zur Verfügung; nach Ausschalten der Quelle tritt die Erholung des Materials ein, die meßtechnisch nur noch mit Transmissionsmessungen erfaßt wird. Transmissionsverluste des Fluoreszenzlichtes lassen sich aber bei bekanntem Fluoreszenzspektrum mit gemessenen Absorptionskonstanten berechnen (Anhang A.2).

Die Messung des röntgeninduzierten Fluoreszenzlichtes wird von den Schwankungen der Dosisleistung der Röntgenröhre beeinflusst; zeitliche Änderungen der Röntgenröhre, die in relativ kurzen Zeiten etwa 3% betragen können, bewirken ebenso große Schwankungen im Fluoreszenzsignal. Leichte Änderungen der Fluoreszenzintensität, die z. B. durch geringfügige Veränderungen der Fluoreszenzlichtausbeute hervorgerufen werden, können so zwar nicht erfaßt werden, stärkere Änderungen, wie sie bei Bestrahlung in Argon auftreten, sind jedoch deutlich sichtbar. Eine Bestrahlung in Argon mit einer Dosis von 1,26 kGy auf einer Faserlänge von 6,5 cm bewirkt einen Rückgang in der Intensität um knapp 20% (Abb. 6.36).

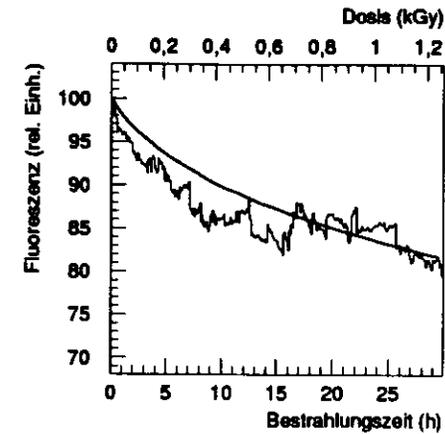


Abbildung 6.36: Rückgang des Fluoreszenzlichtsignals einer 6,5 cm langen Faser (BCF12) bei Bestrahlung in Argon; die durchgezogene Linie entspricht der durch Transmissionsverluste berechneten Intensitätsentwicklung ($D=42 \text{ Gy/h}$).

6.6.2 Änderung der primären Lichtausbeute

Ein wichtiger Aspekt bei der Beurteilung von Szintillatoreigenschaften ist die Reproduzierbarkeit des Fluoreszenzsignals eines Szintillators. Die Signalhöhe sollte nur von der Energie der Teilchen und nicht von äußeren Bedingungen wie Temperatur oder Umgebungsatmosphäre abhängen. Von einigen Szintillatoren ist jedoch bekannt, daß sich ihre primäre Lichtausbeute ändert, wenn sich der Anteil des Sauerstoffs in der Umgebungsatmosphäre ändert. Die primäre Lichtausbeute ist die Lichtmenge, die pro deponierter Energie durch minimal ionisierende Teilchen in den Szintillator gelangt. Für den Szintillator SCSN38 auf Polystyrolbasis zeigt sich ein Rückgang in der Fluoreszenzlichtausbeute, wenn sich in der Umgebungsatmosphäre der Anteil des Sauerstoffs erhöht. Die Lichtausbeute ist in sauerstofffreier Atmosphäre am größten und sinkt proportional zum Sauerstoffpartialdruck um etwa 8% bei einem Sauerstoffpartialdruck von 1000 hPa [HH93]. Dieser Prozeß wird als Quenching bezeichnet.

Auch BCF12 zeigt eine Abhängigkeit der Fluoreszenzlichtausbeute von den äußeren Bedingungen. Während der Bestrahlung in Argon wird in der Probe vorhandener Sauerstoff chemisch gebunden. Wenn kein Sauerstoff mehr in der Probe verfügbar ist, zeigt sich der in Abschnitt 6.3.2 beschriebene steilere Anstieg in der Absorptionsentwicklung. Kurz zuvor steigt die Fluoreszenzlichtausbeute deutlich an (Abb. 6.37). Dieser Anstieg wird in allen Bestrahlungen mit zwei Bestrahlungsphasen beobachtet.

Zu Beginn der ersten Phase sinkt die Fluoreszenzintensität wegen nur leicht zunehmender Absorption in der Faser kaum ab; danach wird die zunehmende Fluoreszenzlichtausbeute sichtbar und in der zweiten Bestrahlungsphase wird die starke Absorption sichtbar. Die Absorption steigt für das Fluoreszenzlicht während der ganzen Bestrahlungszeit, weil das Fluoreszenzspektrum von 400 bis 550 nm reicht und die Absorptionszentren um 420 nm keine Sättigung zeigen. Die Absorption im langwelligen Bereich ist aber wesentlich stärker, so daß sich die Fluoreszenzlichtintensität bei einer Sättigung der Absorption in diesem Wellenlängenbereich relativ wenig ändert. Die Zunahme der primären Fluoreszenzlichtausbeute am Ende der

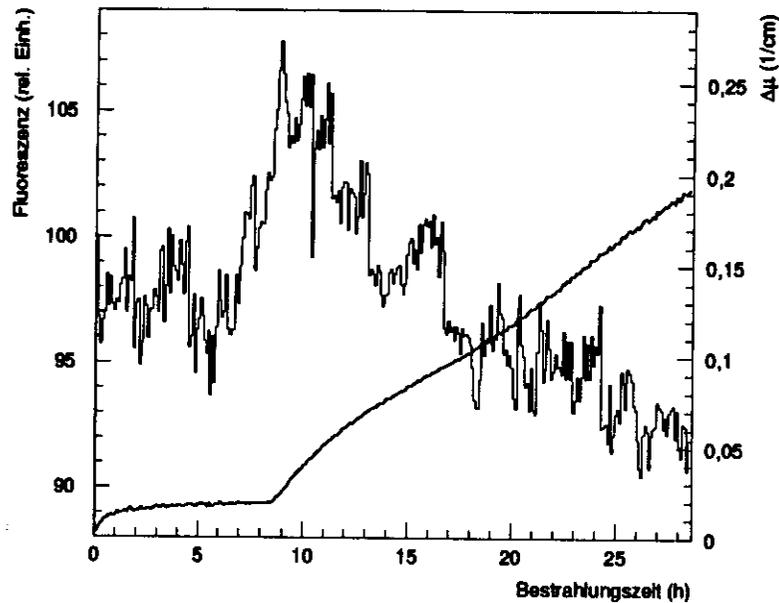


Abbildung 6.37: Der Verbrauch des Sauerstoffs durch die Bestrahlung ist mit einem Anstieg der primären Fluoreszenzlichtausbeute verbunden. Zum Ende der ersten Bestrahlungsphase steigt die Fluoreszenzlichtausbeute um mehr als 5% an. Der Anstieg der Absorption (glatte Kurve, $\lambda=580\text{ nm}$) nach der ersten Sättigung fällt mit dem Ende des Fluoreszenzlichtanstieges zeitlich genau zusammen ($D=1,26\text{ kGy}$, $\dot{D}=21\text{ Gy/h}$).

ersten Bestrahlungsphase beträgt für die untersuchten Fasern im Mittel ($6,8 \pm 5$) %.

Die Beschreibung der Transmissionsverluste des Fluoreszenzlichtes ist durch die Messung der optischen Absorption möglich (Abb. 6.36 und 6.38); für alle Bestrahlungen mit deutlichen Fluoreszenzeinbußen stimmen berechnete und gemessene Fluoreszenzintensitäten (ohne Quenching) innerhalb der Fehler überein.

6.6.3 Effektive Abschwächlänge

Für eine Beurteilung der Qualität eines Szintillators ist die effektive Abschwächlänge eine Größe, die zum quantitativen Vergleich verschiedener Bestrahlungssituationen besonders geeignet ist. Bei gemessener Absorption und bekanntem Fluoreszenzspektrum ist der Einfluß der Absorption auf die Abschwächlänge berechenbar (An-

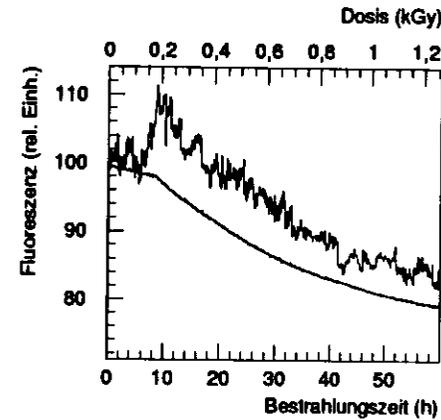


Abbildung 6.38: Rückgang des Fluoreszenzlichtsignals einer 6,5 cm langen BCF12 Faser bei Bestrahlung in Argon nach vorheriger Lagerung in Luft; die glatte Kurve entspricht der durch Transmissionsverluste berechneten Intensitätsentwicklung. Der Anstieg der primären Lichtausbeute zum Ende der ersten Bestrahlungsphase wird durch Transmissionsmessungen nicht erfaßt.

hang A.2.2).

Die Entwicklung der berechneten Abschwächlängen verläuft ähnlich wie die der Absorption; allerdings ist eine Trennung nach verschiedenen Kinetiken nicht mehr möglich. Während der Bestrahlung wird in jedem Fall die Abschwächlänge ständig zurückgehen. Da das Fluoreszenzlicht von beiden hauptsächlich beschriebenen Absorptionszentren beeinflusst wird, steigt die Absorption für das Fluoreszenzlicht ständig an, weil die Absorption um 420 nm keine Sättigung zeigt (Abb. 6.39 und 6.40). Diese Beobachtungen gelten für Bestrahlungen sowohl in Luft als auch in Argon. Für Bestrahlungen in Luft ist auffällig, daß bei niedriger Dosisleistung ein stärkerer Rückgang der Abschwächlänge für das Fluoreszenzlicht als bei höherer Dosisleistung berechnet wird (Abb. 6.39). Dies folgt aus der beschriebenen Beobachtung, daß bei niedriger Dosisleistung für die Absorption um 420 nm ein größerer Schaden pro Dosis auftritt (Abschnitt 6.5.2).

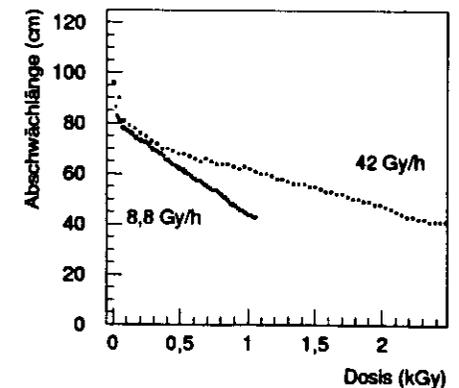


Abbildung 6.39: Berechneter Rückgang der effektiven Abschwächlänge während der Bestrahlung in Luft für zwei unterschiedliche Dosisleistungen

Untersuchungen dieses Fasertyps (0,5 mm Durchmesser) mit Teilchenanregung ergaben nach Bestrahlung mit einer Dosis von 5 kGy in Luft eine Reduktion der Abschwächlänge um 53 % [Bar94]. Die Bestrahlung erfolgte mit einer Dosisleistung von 2 kGy/h und die Auswertung zwei Stunden nach Bestrahlungsende.

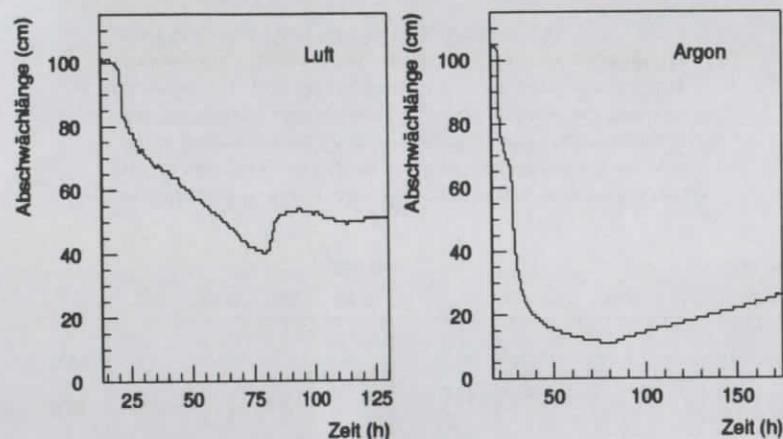


Abbildung 6.40: Entwicklung der effektiven Abschwächlänge während und nach der Bestrahlung in Luft und in Argon ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h).

Damit im Meßbetrieb eine gute Energieauflösung erreicht wird, ist ein möglichst hohes und stabiles Fluoreszenzlichtsignal von großer Bedeutung. Dabei erfolgt die Anregung der Faser in der Regel lokal, und der restliche Teil der Faser dient als Lichtleiter bis zum Photomultiplier. Die bei Bestrahlung in Luft ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h) auftretenden Transmissionsverluste für eine 30 cm lange, einseitig verspiegelte Faser² mit einer Anregung in der Mitte sind in Abbildung 6.41 dargestellt. Wird die Faser direkt an einen Multiplier angekoppelt, ergibt sich zwar die größte Intensität, aber auch die stärkste relative Signaländerung während der Bestrahlung. Der Einsatz von Filtern, die den unteren Wellenlängenbereich des Fluoreszenzlichtes herausfiltern, führen zu einem geringeren Strahlenschaden bei deutlich niedrigerer Gesamintensität. Für diese Berechnungen wurden Filtereigenschaften mit einer Transmission von 85 % ab der Grenzwellenlänge λ_{\min} angenommen. Der relative Signalverlust nach der Ausheilung beträgt ohne Filter 19 %, mit einem 435-nm-Filter 16,5 % und mit einem 455-nm-Filter 12 %.

Kurzfristige Änderungen der Fluoreszenzlichtintensität treten zu Beginn und sofort nach Beendigung der Bestrahlung auf (Abb. 6.42, links). Dabei wird innerhalb von

² Im HI-SpaCal werden die Fasern an einer Seite ausgelesen. Zur Verbesserung der Intensität und Vergrößerung der Abschwächlänge sind die dem Photomultiplier gegenüber liegenden Seiten der Fasern verspiegelt.

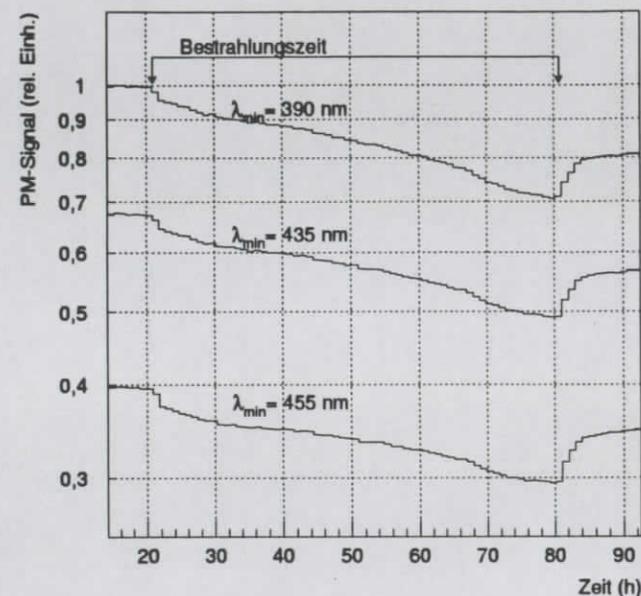


Abbildung 6.41: Die berechnete Fluoreszenzintensität während und nach der Bestrahlung in Luft für eine 30 cm lange an einem Ende verspiegelte Faser bei Anregung in der Mitte für eine Faser ohne ($\lambda_{\min}=390$ nm) und mit zwei verschiedenen ($\lambda_{\min}=435$ nm bzw. 455 nm) Filtern ($D=2,5$ kGy, $\dot{D}=42$ Gy/h). Ausschnitte zu Beginn der Bestrahlung und unmittelbar nach Bestrahlungsende zeigt Abbildung 6.42.

15 Minuten mit einer applizierten Dosis von 10 Gy ein Rückgang der Intensität um etwa 3 % eintreten (Abb. 6.42, links). Dieser Rückgang fällt bei Einsatz der Filter stärker aus, weil die kurzlebige Absorption von Radikal $R_2\cdot$ im langwelligen Bereich größer ist. Unmittelbar nach Bestrahlungsende setzt die Ausheilung ein, wodurch die Fluoreszenzintensität wieder deutlich ansteigt (Abb. 6.42, rechts). Auch der Anstieg der Intensität beträgt etwa 3 % während der ersten 15 Minuten nach Bestrahlungsende. Für eine Bestrahlung mit gleicher Dosisleistung unter Sauerstoffabschluß beträgt der Rückgang 13 % in 15 Minuten, während der Anstieg nach Bestrahlungsende bei nur 5 % der Gesamtintensität noch 6 % in 15 Minuten ausmacht. Diese kurzfristigen Beeinträchtigungen werden im wesentlichen durch Radikal $R_2\cdot$ verursacht und sind daher proportional zur Wurzel der Dosisleistung.

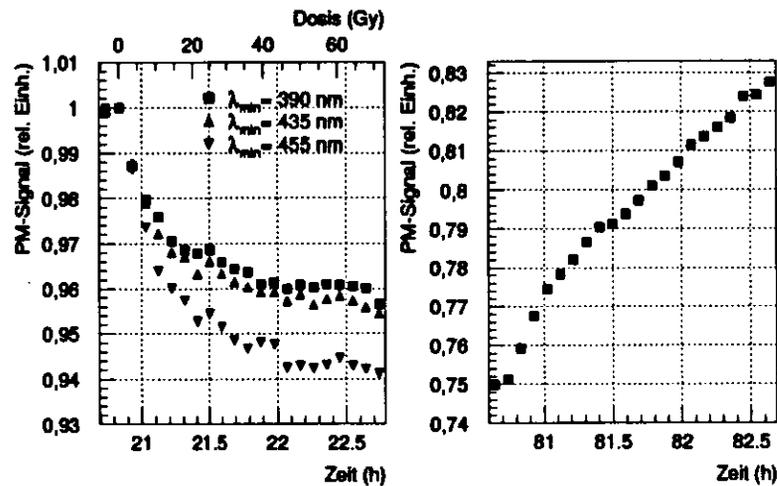


Abbildung 6.42: Links: Die berechnete, normierte Fluoreszenzintensität zu Beginn der Bestrahlung in Luft für eine 30 cm lange an einem Ende verspiegelte Faser bei Anregung in der Mitte für eine Faser ohne ($\lambda_{\text{min}}=390 \text{ nm}$) und mit zwei verschiedenen ($\lambda_{\text{min}}=435 \text{ nm}$ bzw. 455 nm) Filtern. Rechts: Der Anstieg der Fluoreszenzintensität nach Bestrahlungsende für die Faser ohne Filter ($D=2,5 \text{ kGy}$, $\dot{D}=42 \text{ Gy/h}$).

Kapitel 7

Bestrahlung der Faser SCSF81(Y7) in Luft

7.1 Zeitliche Entwicklung während und nach der Bestrahlung

Als eine weitere Faser wurde SCSF81(Y7) (Kuraray) in Luft bestrahlt. Hierbei handelt es sich um eine Polystyrolfaser von 1 mm Durchmesser. Neben dem Fluoreszenzfarbstoff enthält das Material einen weiteren Farbstoff (Y7), der nach der Absorption von blauem Licht grünes Licht aussendet. Dieser Wellenlängenschieber soll das Fluoreszenzlicht in einen Spektralbereich verschieben, in dem die Faser niedrigere Strahlenschäden zeigt. Der untersuchte Wellenlängenbereich ist entsprechend zu größeren Wellenlängen verschoben und reicht von 480 nm bis knapp 700 nm. Die bestrahlte Länge betrug 100 cm.

In dieser Faser bildet sich eine sehr breitbandige Absorption aus, deren Maxima um 500 nm und um 630 nm angesiedelt sind (Abb. 7.1, links und 7.2). Die langwellige Absorption um 630 nm zeigt eine rasche Sättigung mit einem anschließenden leichten Rückgang während der Bestrahlung. Nach Bestrahlungsende wird eine langsame Ausheilung beobachtet. Die kurzwellige Absorption verhält sich dazu sehr unterschiedlich; erst zum Ende der Bestrahlungszeit wird annäherungsweise eine Sättigung beobachtet, und nach Bestrahlungsende tritt eine sehr schnelle partielle Ausheilung ein.

Die Rekombination der Absorptionszentren nach der Bestrahlung führt nicht auf eine vollständige Ausheilung, sondern auf deutliche Absorptionen. Mit der Annahme, daß die permanente Absorption gleichmäßig während der Bestrahlung gebildet wird, kann diese von der gemessenen Absorption subtrahiert werden (Abb. 7.1, rechts). Damit zeigt sich in beiden Verläufen eine Sättigung mit einem Rückgang der Absorption noch während der Bestrahlung.

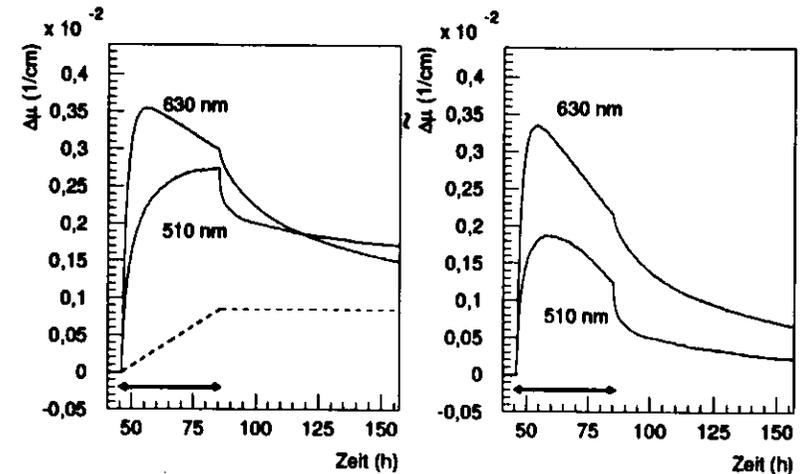


Abbildung 7.1: Entwicklung des Strahlenschadens von SCSF81(Y7) während und nach Bestrahlung in Luft für 510 nm und 630 nm ($D = 2,7 \text{ kGy}$, $\dot{D} = 68 \text{ Gy/h}$). Die gestrichelte Linie stellt den angenommenen Verlauf der permanenten Absorption für 630 nm dar. Für 510 nm führt die permanente Absorption auf einen Wert von $1,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. In der rechten Abbildung ist der instabile Anteil der Absorption $\Delta\mu(t)$ für diese beiden Wellenlängen dargestellt.

7.2 Kinetik der Radikalentwicklung

Die Steigung in der Zunahme des Strahlenschadens zu Beginn der Bestrahlung (Abb. 7.3) im kurzwelligen Bereich entspricht in etwa der Absorptionzunahme in BCF12 bei einer Wellenlänge von 420 nm (Abb. 6.23, S. 61). Sowohl die permanente als auch die langwellige Absorption sind jedoch für SCSF81(Y7) um mehr als den Faktor zehn niedriger als für BCF12.

Die kurzwellige Absorption ist mit der langwelligen überlagert; eine Trennung ist nur möglich, wenn die zeitlichen Abläufe den einzelnen Absorptionszentren zugeordnet werden können. Das ist im vorliegenden Fall für die permanente Absorption P (Abb. 7.3) möglich. Diese läßt sich durch Extrapolation der Ausheilung in Abbildung 7.1 ermitteln.

Für den Fall, daß Sättigungseffekte während der Bestrahlung auf dieselben Reaktionen wie die Ausheilung nach Bestrahlungsende zurückzuführen sind, sollte die Ausheilung unmittelbar nach Bestrahlungsende bis auf das Vorzeichen die gleiche Steigung wie der Anstieg zu Beginn der Bestrahlung aufweisen.

Für die Ausheilung der kurzwelligen Absorption ist die Steigung vom Betrag et-

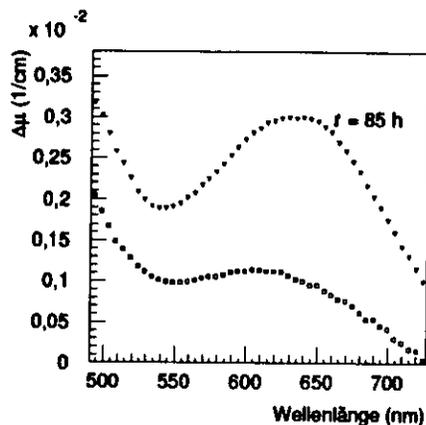


Abbildung 7.2: Spektraler Verlauf der Absorption zu Ende der Bestrahlung ($t=85$ h) sowie der permanente Schaden, der sich mit einer Kinetik zweiter Ordnung ergibt ($\dot{D}=68$ Gy/h, $D=2,7$ kGy).

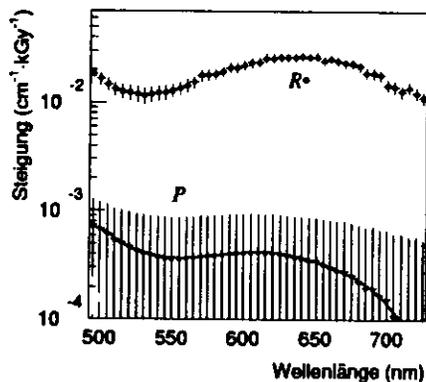


Abbildung 7.3: Mittlere Steigung in der Zunahme des Strahlenschadens zu Beginn der Bestrahlung sowie des permanenten Strahlenschadens während der Bestrahlung in Luft als Funktion der Wellenlänge ($\dot{D}=68$ Gy/h, $D=2,7$ kGy).

wa genau so groß wie der Anstieg zu Beginn der Bestrahlung; für die langwellige Absorption beträgt diese Steigung nur ein Neuntel der Anfangssteigung (Abb. 7.4).

Diese Steigungsänderung der langwelligen Absorptionsentwicklung kann durch das Käfigmodell (Abschnitt 5.2, S. 33) beschrieben werden. Während der Sättigung finden Rekombinationen in Käfigen sowie Rekombinationen der Absorptionszentren über einen Prozeß zweiter Ordnung statt. Nach der Bestrahlung finden keine Rekombinationen in den Käfigen mehr statt, wenn eine sofortige Rekombination in den Käfigen vorausgesetzt wird. Demzufolge wird nach der Bestrahlung eine langsamere Ausheilung beobachtet als während der Bestrahlung. Die Annahme, daß die Ausheilung in den Käfigen bei Anwesenheit von zwei Radikalen sofort erfolgt, gilt für die Faser SCSF81(Y7) nur mit einer leichten Einschränkung. Nach Bestrahlungsende wird zwar ein Radikalabbau mit einer Kinetik zweiter Ordnung beobachtet, direkt zu Beginn der Ausheilungsphase schreitet die Ausheilung jedoch schneller voran als

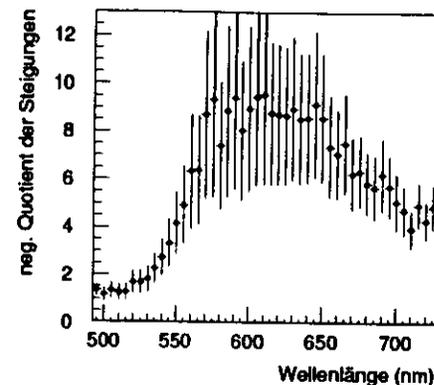


Abbildung 7.4: Quotient der Steigung zu Beginn der Bestrahlung und der negativen Steigung unmittelbar nach Ende der Bestrahlung (SCSF81(Y7), Luft, $\dot{D}=68$ Gy/h, $D=2,7$ kGy).

durch einen ungestörten Prozeß zweiter Ordnung (Abb. 7.5).

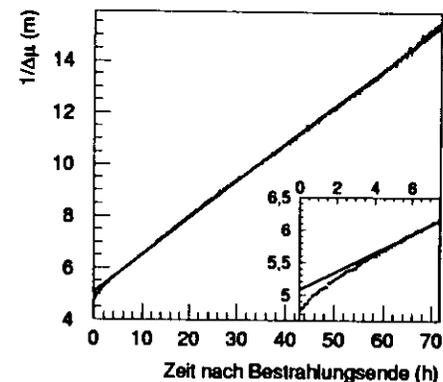


Abbildung 7.5: Die Ausheilung um 630 nm (s. Abb. 7.1) des kurzlebigen Anteils der Absorption ($\Delta\mu_{\text{perm}}=8,5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$) wird vier Stunden nach Bestrahlungsende durch einen Prozeß zweiter Ordnung beschrieben ($D = 2,7$ kGy, $\dot{D} = 68$ Gy/h). Zu Beginn der Ausheilung treten noch Rekombinationen in Käfigen auf, wodurch ein schnellerer Rückgang der Absorption beobachtet wird.

Der direkte Vergleich der Steigungen zu Beginn der Bestrahlung und zu Beginn der Ausheilung ergibt nach Gleichung 5.23 für die Größe ϵ einen Wert von $0,12 \pm 0,03$. Demnach wird (Gl. 5.19) 90 % der möglichen Sättigungskonzentration, welche durch die Größe der Käfige im Käfigmodell bestimmt ist, erreicht.

Hierbei ist jedoch zu berücksichtigen, daß die Steigung zu Beginn der Ausheilung nicht allein auf Reaktionen zweiter Ordnung zurückzuführen ist, sondern zum Teil durch Rekombinationen in Käfigen bestimmt wird. Eine Anpassung an die Ausheilung nach mehr als vier Stunden Ausheilungszeit ergibt eine flachere Steigung, die für ϵ auf einen Wert von $0,035 \pm 0,01$ führt. Die Bestimmung des Anteils der Zerfälle in Käfigen ist so unsicher, weil der Anteil der Rekombinationen über einen Prozeß zweiter Ordnung während der Sättigung sehr klein ist, was sich in der ungenauen

Bestimmung des Quotienten beider Steigungen widerspiegelt (Abb. 7.4).

Abbildung 7.6: Die Beschreibung der Kinetik (SCSF81(Y7), 630 nm) erfolgt mit einer Reaktion zweiter Ordnung mit Berücksichtigung des Käfigmodells; der Anteil der Reaktionen in den Käfigen während der Sättigung beträgt etwa 90%; der konstante Abfall der Absorption in der Sättigung ist unbekannter Herkunft.

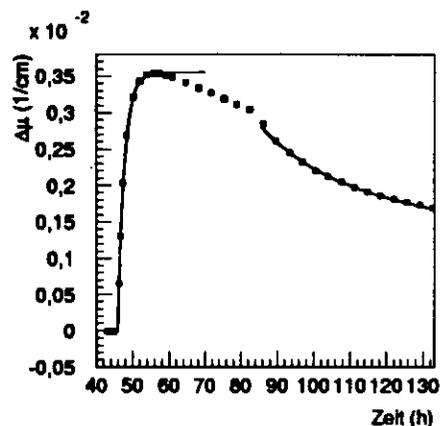
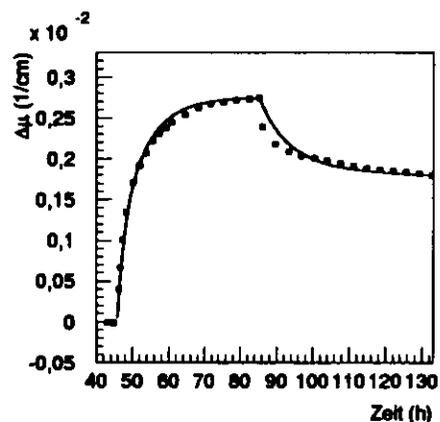


Abbildung 7.7: Die Beschreibung der Kinetik (SCSF81(Y7), 510 nm) erfolgt mit einer Reaktion erster Ordnung mit einer schwachen Überlagerung aus der langwelligen Absorption. Direkt nach Bestrahlungsende ist die beobachtete Ausheilung schneller als durch das Modell beschrieben.



Mit diesen Parametern läßt sich der Anstieg der Absorption gut beschreiben; die Übertragung auf die Ausheilung ist aufgrund der beschriebenen Unsicherheiten nicht direkt möglich; die Anpassung (Abb. 7.6) erfolgt mit $\epsilon = 0,06$. Ungeklärt ist der konstante Abfall der Absorption nach Eintritt der Sättigung. Eine mögliche Ursache ist die Reaktion unterschiedlicher Radikale miteinander. Wenn die eine Radikalsorte wesentlich langsamer als die andere erzeugt wird, kommt der Zerfallkanal durch die Reaktion dieser beiden Radikale untereinander erst nach längerer Bestrahlungszeit zum Tragen, weil erst dann eine merkliche Konzentration der ersten Radikalsorte gebildet worden ist.

Für die kurzwellige Absorption (Abb. 7.7) kann der Anstieg nur unzureichend mit einer Reaktion erster Ordnung (ohne Käfige) beschrieben werden. Für die Ausheilung

führt diese Kinetik auf eine zu langsame Rekombination. Hier liegt die Deutung als eine diffusionsbedingte Ausheilung mit Rekombinationen von Radikalen mit Sauerstoff nahe. Es bestehen deutliche Parallelen zur Absorptionsentwicklung von BCF12. Sowohl kurzlebige als auch permanente Absorptionen sind mit dem Emissionsspektrum überlagert und können während der Bestrahlung das Fluoreszenzlicht beeinflussen. Allerdings ist die langwellige Absorption in SCSF81(Y7) wesentlich niedriger als in BCF12.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit den optischen Eigenschaften von szintillierenden Fasern, welche durch die Einwirkung ionisierender Strahlen in Mitleidenschaft gezogen werden. Bei den untersuchten Kunststofffasern handelt es sich um Szintillatoren auf Polystyrolbasis, denen zur Verbesserung der Lichtausbeute Farbstoffe beigemischt wurden (BCF12, Bicron und SCSF81(Y7), Kuraray). Diese Szintillatoren wurden im Hinblick auf die Schädigung in unterschiedlichen Umgebungsatmosphären untersucht, wobei der Schwerpunkt der Untersuchungen auf der Faser BCF12 lag.

Der Strahlungsuntergrund an Teilchenbeschleunigern bewirkt Veränderungen an den Materialien, die zu einer Beeinträchtigung der optischen Qualität eines Detektors führen kann. Zum Verständnis dieser Effekte wurden mit einer Röntgenröhre Bestrahlungen von Szintillationsfasern unter verschiedenen Umgebungsatmosphären durchgeführt. Besonderes Augenmerk wurde auf die Frage gelenkt, wie sich die Szintillatoren während der Bestrahlung verhalten.

Als optische Untersuchungsmethode wurde die Transmissionsspektroskopie gewählt, die mit guter Wellenlängenauflösung das zeitliche Verhalten von Absorptionszentren erfaßt. Es hat sich gezeigt, daß während der Bestrahlung kurzlebige Absorptionszentren gebildet werden, deren Einfluß auf das Fluoreszenzlicht zum Teil größer ist als der Einfluß stabiler Absorptionszentren, die auch längere Zeit nach Bestrahlungsende nachgewiesen werden können. Kurzlebige Absorptionszentren zeigen steile Verläufe des Absorptionsverhaltens bei Änderung der Dosisleistung einer Bestrahlung und Sättigungseffekte bei konstanter Dosisleistung. Für beide Szintillatoren zeigen sich im langwelligen Bereich ihrer jeweiligen Emissionsbereiche breitbandige, kurzlebige Absorptionszentren, die nach einer Kinetik zweiter Ordnung abgebaut werden.

Großen Einfluß auf die Ausbildung kurzlebiger Absorptionszentren in BCF12 spielt der Sauerstoff; dieser führt zu einer starken Reduktion der kurzlebigen Absorption. Allerdings zeigte sich, daß diese Absorptionszentren, wenn sie in niedriger Konzentration vorliegen, auch bei Anwesenheit von Sauerstoff nicht von diesem abgebaut werden. Deshalb kann nicht davon ausgegangen werden, daß eine ständige Versorgung der Fasern mit Sauerstoff die Entstehung von kurzlebigen Absorptionen vollständig verhindert.

Die Bestrahlung des Szintillators führt zu einer Reduzierung des Sauerstoffgehaltes,

so daß sich im Innern einer Faser eine erhöhte Absorption ausbildet. Erste Erscheinungen dieser Art treten bereits für Dosen unterhalb von 300 Gy mit einer Dosisleistung von 9 Gy/h auf. Diese Effekte des Sauerstoffabbaus lassen eine modellhafte Beschreibung der Absorptionsentwicklung nicht zu, weil die Sauerstoffdiffusion zu stark von den äußeren Bedingungen abhängt. Eine solche Beschreibung ist demgegenüber für eine sauerstofffreie Bestrahlungssituation möglich. Die Absorption setzt sich dann neben einem permanenten Anteil molekularer Herkunft aus einem langlebigen Anteil mit einem Maximum um 420 nm und einem kurzlebigen Anteil um 580 nm zusammen. Diese langwellige Absorption werden durch Radikale verursacht, die mit einer Kinetik zweiter Ordnung beschrieben werden können. Die Reaktionskonstante ist bei Abwesenheit von Sauerstoff um mehr als zwei Größenordnungen niedriger als bei Anwesenheit von Sauerstoff.

Für die Beurteilung der Strahlenhärte eines Szintillators ist die Beeinträchtigung des Fluoreszenzlichtes entscheidend. Deshalb wurde der Einfluß der Absorptionszentren auf das Fluoreszenzlicht rechnerisch erfaßt. Damit lassen sich die Absorptionsverluste, die das Fluoreszenzlicht erleidet, auf beliebige Faserlängen und Anregungsorte umrechnen.

Die Abschwächlänge des blauern Fluoreszenzlichtes in BCF12 geht während der Bestrahlung in Luft nach einer Dosis von 2,5 kGy bei einer Dosisleistung von 42 Gy/h um 60 % zurück; derselbe Rückgang wird bei einer Dosisleistung von 9 Gy/h bereits nach einer Dosis von 1 kGy beobachtet. Nach der Ausheilung reduziert sich der Rückgang auf 45 %. Deutlich stärker reduziert sich die Abschwächlänge während der Bestrahlung in Argon auf etwa 10 % des Ausgangswertes.

Für den Einsatz im Detektor beschreiben die Berechnungen der Absorptionsverluste für 30 cm lange, einseitig verspiegelte Fasern die erwarteten Signalverluste bei der Energiemessung. Dabei fallen die kurzfristigen Änderungen zu Beginn der Bestrahlung und unmittelbar nach Beendigung der Bestrahlung in Luft besonders auf. Diese belaufen sich bei Anregung in der Fasermitte auf 3 % innerhalb der ersten 15 Minuten sowohl bei Bestrahlung mit einer Dosisleistung von 42 Gy/h als auch während der anschließenden Ausheilungsphase.

Die szintillierende Faser SCSF81(Y7) zeigt prinzipiell ein ähnliches Verhalten. Auch in dieser Faser entstehen kurzlebige Absorptionszentren, die das Fluoreszenzlicht betreffen. Qualitativ ähneln sich die Absorptionsverläufe, obwohl die Faser SCSF81(Y7) grünes Licht emittiert. Am langwelligen Ende des Emissionsspektrums bilden sich kurzlebige Absorptionszentren aus, während zum kurzwelligen Ende die permanente Absorption ansteigt. Im Vergleich zu BCF12 fällt die Absorption für diesen Szintillator bei Bestrahlung in Luft jedoch deutlich schwächer aus. Außerdem wurde bei Bestrahlungen bis 2,7 kGy kein Einfluß durch den Verbrauch des Sauerstoffs nachgewiesen.

Anhang A

Ergänzungen

A.1 Das Programm PHOTCOEF

PHOTCOEF¹ ist ein Programm für IBM-PCs, das Absorptionskoeffizienten für Wechselwirkung mit Photonen berechnet; als Grundlage dienen die Energieniveaus aller Elemente des Periodensystems². Ausgehend von diesen Werten können Transmission, Abschirmung, Dosisdeposition und Dosisantwortfunktionen berechnet werden.

Für eine typische Dosisberechnung wird dem Programm die Geometrie der bestrahlten Materialien in Form einzelner Flächen übergeben:

Name of the Layered Object: RöhreKammerPMMA

The Layered Object is composed of 7 layers:

1 Beryllium	Thick.: 1.000E-01	Incr.: 10	Dens.: 1.848E+00
2 Aluminium	Thick.: 2.000E-01	Incr.: 20	Dens.: 2.699E+00
3 Air	Thick.: 1.370E+01	Incr.: 30	Dens.: 1.204E-03
4 Aluminium	Thick.: 1.000E-01	Incr.: 10	Dens.: 2.699E+00
5 Argon	Thick.: 7.800E+00	Incr.: 30	Dens.: 1.784E-03
6 PMMA	Thick.: 3.000E-01	Incr.: 50	Dens.: 1.180E+00
7 Argon	Thick.: 6.800E+00	Incr.: 30	Dens.: 1.784E-03

Für die Berechnungen werden Materialzusammensetzung, Dicke, Anzahl der Schichten pro Fläche sowie die Dichte des Materials berücksichtigt. Jede Fläche kann in höchstens 299 Schichten unterteilt werden. Die Dosisberechnung erfolgt für jede Schicht, wobei für die Röntgenquelle eine punktförmige Strahlungsquelle mit einem Abstand von 3cm von der ersten Schicht angegeben wird. Diese Entfernung

¹ AIC SOFTWARE, Grafton, Massachusetts 01519, USA.

² Genauere Informationen über den Rechenweg liegen nicht vor; die Energieniveaus und Dichten der Elemente sind offensichtlich die einzigen Daten, auf die das Programm zugreifen kann.

entspricht dem Abstand Fokus — Berylliumfilter in der Röntgenröhre. Werden die Bremsstrahlungsverluste (Abschnitt 2.2.1) vernachlässigt, läßt sich die Dosis aus dem Massenabsorptionskoeffizienten μ_{en} berechnen. Zusätzlich müssen der Aufbau-effekt und der Fluß an Sekundärelektronen berücksichtigt werden.

Ein Beispiel für berechnete Massenabsorptionskoeffizienten zeigt Abbildung A.1.

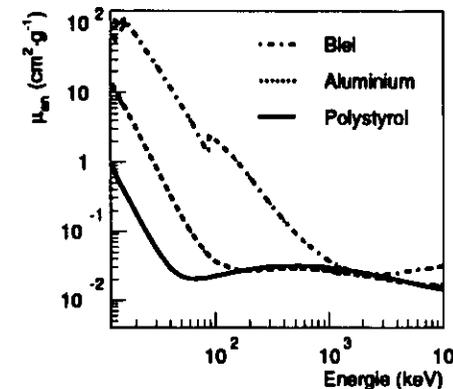


Abbildung A.1: Massenabsorptionskoeffizienten von Blei, Aluminium und Polystyrol nach [AIC95]

A.2 Mathematische Beschreibung des Fluoreszenzsignals

A.2.1 Transmissionsverluste

Für die Auswirkungen auf einen Detektor ist die Abschwächung des Fluoreszenzsignals durch die Bestrahlung von besonderem Interesse. Aus den gemessenen Absorptionskonstanten läßt sich der Einfluß auf das Fluoreszenzlicht berechnen, der auf die Absorption des Fluoreszenzlichtes zurückzuführen ist und für den Zeitraum der Bestrahlung als Untergrundsignal gemessen wird (Abschnitt 4.2.1). Dazu werden drei Annahmen gemacht:

- Die Schädigung der szintillierenden Faser ist homogen.
- Die Beeinträchtigung der Fluoreszenzintensität ist hauptsächlich durch Absorptionen bedingt; d. h. es tritt keine nennenswerte Änderung der primären Fluoreszenz ein.
- Das während der Bestrahlung induzierte Fluoreszenzlicht entsteht homogen im Bestrahlungsbereich.

Die zweite Voraussetzung ist nicht erfüllt, wenn der Verbrauch des Sauerstoffs durch die Bestrahlung (Abschnitt 6.6.2) die primäre Fluoreszenzlichtausbeute beeinflusst.

Eine solche Beeinflussung wirkt sich jedoch nicht auf die Transmissionseigenschaften der Fasern aus; die Intensität des transportierten Fluoreszenzlichtes steigt oder fällt im gleichen Maße wie die primäre Fluoreszenzlichtintensität.

Ausgangspunkt der Berechnungen ist das Fluoreszenzspektrum des Szintillators, wie es beim Durchgang ionisierender Teilchen im Szintillator entsteht. Die relative Intensität des Fluoreszenzlichtes für BCF12 ist in Abb. A.2 dargestellt.

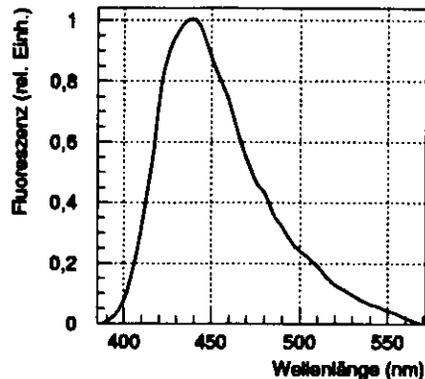


Abbildung A.2: Fluoreszenzspektrum von BCF12 [Bic90]

Dieses Fluoreszenzlicht wird während der Bestrahlung homogen in der ganzen Faser induziert. Von jedem Entstehungsort muß das Licht die geschädigte Faser durchqueren. Für eine solche Geometrie (Abb. A.3) gilt für einen beliebigen Punkt, an dem Licht mit der Intensität I_0 mit der Entfernung l zur Auslekante entsteht:

$$I(l, \lambda) = I_0(\lambda) \cdot e^{-\mu(\lambda) \cdot l} \quad (\text{A.1})$$

Die Länge l gilt für geradliniges Licht; bei isotroper Emission des Lichtes verlängert sich der Weg entsprechend. Im BCF12 beträgt der maximale Reflexionswinkel $21,4^\circ$ (Abschnitt 3.1); daraus resultiert eine Verlängerung des Lichtweges um höchstens 7,4%.

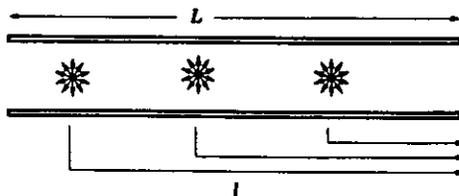


Abbildung A.3: Wenn das Fluoreszenzlicht homogen in der Faser induziert wird, erfolgt die Berechnung der Intensität nach Gleichung A.2

Für eine homogene Fluoreszenzlichtverteilung treten alle Entfernungen zur Auslekante bis zur Gesamtlänge L der Faser auf, Gleichung A.1 ändert sich zu:

$$\begin{aligned} I(\lambda) &= \int_{l=0}^L \frac{I_{\text{ges}}(\lambda)}{L} \cdot e^{-\mu(\lambda) \cdot l} dl \\ &= \frac{I_{\text{ges}}(\lambda)}{L \cdot \mu(\lambda)} (1 - e^{-\mu(\lambda) \cdot L}) \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Dabei beschreibt $I_{\text{ges}}(\lambda)$ die gesamte Intensität des in Nachweisrichtung emittierten Fluoreszenzlichtes.

Zur Berechnung der Absorption des Fluoreszenzlichtes wird als wellenlängenabhängige Ausgangsintensität das Fluoreszenzspektrum von BCF12 (Abb. A.2) in Gleichung A.2 eingesetzt, wobei die jeweils interessierenden Absorptionskonstanten eingesetzt werden.

Die auf diese Weise erhaltene Schwächungskurve wird nicht mehr durch eine einfache Exponentialfunktion beschrieben, weil die Absorptionskonstante wellenlängenabhängig ist. Innerhalb kurzer Strecken wird jenes Licht besonders stark abgeschwächt, für welches die Absorptionskonstante größer ist. Damit tritt zu Beginn der Abschwächung eine stärkere Zunahme der Intensität auf. Nach längeren Wegen ist nur noch Licht unterwegs, das weniger geschwächt wird; die Abnahme der Intensität wird schwächer. Wenn die Entfernung, bis zu der die Gesamtintensität des Fluoreszenzlichtes auf $1/e=37\%$ der Ausgangsintensität abgefallen ist, als effektive Abschwächlänge bezeichnet wird, äußert sich dieser Sachverhalt in einer Abnahme der effektiven Abschwächlänge mit zunehmender Faserlänge.

A.2.2 Effektive Abschwächlänge

Für die Berechnung effektiver Abschwächlängen werden andere Voraussetzungen als bei der Berechnung der gemessenen Intensitätsänderung des Fluoreszenzlichtes gemacht. Diese Voraussetzungen sind:

- Die Schädigung der szintillierenden Faser ist homogen.
- Die Beeinträchtigung der Fluoreszenzintensität ist hauptsächlich durch Absorptionen bedingt; d. h. es tritt keine nennenswerte Änderung der primären Fluoreszenz ein.
- Das betrachtete Fluoreszenzlicht entsteht an einer vernachlässigbar kleinen Stelle innerhalb der Faser.

Für eine Faser, in der das Fluoreszenzlicht eine Entfernung mit der Länge L zurücklegen muß, gilt bei einer wellenlängenabhängigen Absorptionskonstanten $\mu(\lambda)$ für die Gesamtintensität I_{ges} :

$$I_{\text{ges}}(L) = \sum_{i=1}^n I_0(\lambda_i) \cdot e^{-\mu_i \cdot L} \quad (\text{A.3})$$

Dabei wird der Wellenlängenbereich (λ_1 bis λ_n) auf den Bereich eingeschränkt, in dem sowohl Transmission als auch Fluoreszenz beobachtet werden.

Für sehr lange Fasern muß berücksichtigt werden, daß die Abschwächlänge mit zunehmender Faserlänge größer wird, weil nach einem längeren Weg durch die Faser der relative Anteil des schwächer absorbierten Lichtes ansteigt.

A.3 Parameter zur Absorptionsentwicklung

A.3.1 Vorbemerkungen

Während der Bestrahlung in Argon zeigt sich für BCF12 eine gute Beschreibung durch den Ansatz zweier Absorptionszentren, die gemeinsam das optische Verhalten des Szintillators bestimmen. Das eine erzeugt eine permanente Absorption, während das zweite durch eine Kinetik zweiter Ordnung beschrieben werden kann. Als Parameter dienen die in Kapitel 5 definierten Wirkungsquerschnitte ($\Sigma_n(\lambda)$, S. 33) und $\Sigma_P(\lambda)$ für die permanente Absorption. Für den linearen Anteil (kurzwellige Absorption durch R_1 - und permanente Absorption) gilt nach Gleichung 5.12:

$$\Delta\mu(\lambda, D) = (\Sigma_1(\lambda) + \Sigma_P(\lambda)) \cdot D \quad (\text{A.4})$$

Die langwellige Absorption wird mit einer hyperbolischen Funktion beschrieben (Gl. 5.9 und 5.11):

$$\begin{aligned} \Delta\mu(\lambda, D) &= \Delta\mu_5(\lambda, D) \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa}{D}} \cdot D\right) \\ &= \Sigma_2(\lambda) \cdot \sqrt{\frac{D}{\kappa}} \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa}{D}} \cdot D\right) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Die Anpassung an die gemessenen Absorptionsentwicklungen durch Bestimmung des Parameters $\Sigma(\lambda)$ führt auf eine größere Reaktionskonstante als die direkte Anpassung mit einer hyperbolischen Funktion. Um eine möglichst gute Beschreibung der tatsächlichen Verläufe zu ermöglichen, entsprechen die in den Tabellen aufgeführten Parameter einer Anpassung mit der tatsächlichen Reaktionskonstante. Das führt zu einer leichten Unterschätzung der Absorption zu Beginn der Bestrahlungen, weil die angepaßte Entwicklung flacher als die gemessene Absorption verläuft (Abb. 6.28, S. 65 und Abb. 6.29, S. 66).

A.3.2 Tabellen

Wellenlänge (nm)	$\Sigma_1 + \Sigma_P$ ($\frac{1}{\text{cm} \cdot \text{MGy}}$)	Σ_2 ($\frac{1}{\text{cm} \cdot \text{MGy}}$)	Wellenlänge (nm)	$\Sigma_1 + \Sigma_P$ ($\frac{1}{\text{cm} \cdot \text{MGy}}$)	Σ_2 ($\frac{1}{\text{cm} \cdot \text{MGy}}$)
410	49,9 ± 3,7	14,6 ± 0,5	530	5,33 ± 0,89	322 ± 15
415	45,9 ± 1,0	25,1 ± 0,9	535	3,41 ± 0,95	348 ± 19
420	43,1 ± 1,5	25,4 ± 0,9	540	2,32 ± 1,30	376 ± 24
425	41,4 ± 1,5	24,0 ± 0,9	545	1,25 ± 1,63	407 ± 37
430	37,3 ± 0,6	23,1 ± 0,8	550	0,88 ± 1,52	445 ± 51
435	33,0 ± 1,0	25,2 ± 0,9	555	1,38 ± 1,53	485 ± 42
440	27,9 ± 0,4	31,8 ± 1,2	560	1,41 ± 1,52	528 ± 45
445	24,9 ± 0,4	35,4 ± 1,3	565	2,78 ± 1,39	569 ± 34
450	21,8 ± 0,4	41,3 ± 1,5	570	1,27 ± 1,50	610 ± 55
455	20,2 ± 0,4	45,2 ± 1,7	575	3,05 ± 1,92	629 ± 36
460	18,4 ± 0,6	49,9 ± 1,9	580	1,39 ± 1,59	639 ± 55
465	16,0 ± 0,5	58,0 ± 2,2	585	1,45 ± 1,52	628 ± 52
470	13,4 ± 1,2	64,6 ± 2,6	590	0,28 ± 2,56	604 ± 77
475	10,0 ± 1,1	75,9 ± 3,1	595	3,20 ± 2,07	560 ± 32
480	9,92 ± 0,67	86,7 ± 3,6	600	2,62 ± 1,70	524 ± 32
485	9,08 ± 0,72	99,6 ± 4,2	605	3,50 ± 1,51	483 ± 26
490	8,06 ± 0,82	116 ± 5	610	2,82 ± 1,77	446 ± 27
495	7,28 ± 0,70	135 ± 6	615	2,28 ± 1,05	416 ± 27
500	7,69 ± 0,55	154 ± 7	620	2,73 ± 1,27	385 ± 23
505	5,58 ± 1,04	184 ± 9	625	2,63 ± 1,35	360 ± 22
510	4,57 ± 1,38	216 ± 11	630	1,78 ± 1,20	340 ± 25
515	6,97 ± 0,83	241 ± 11	635	2,71 ± 1,42	318 ± 19
520	6,52 ± 1,00	274 ± 12	640	2,38 ± 1,33	303 ± 19
525	5,15 ± 1,18	301 ± 14	645	1,85 ± 1,03	289 ± 21

Tabelle A.1: Parameter zur Beschreibung der Absorptionsentwicklung von BCF12 während der Bestrahlung in Argon bzw. für die zweite Bestrahlungsphase nach Verbrauch des gelösten Sauerstoffs. Für alle Wellenlängen gilt: $\kappa = 152 \text{ h}^{-1} \text{MGy}^{-1}$.

A.4 Verzeichnis der Bestrahlungen

A.4.1 Durchgeführte Bestrahlungen

Name	Dosis (kGy)	D (Gy/h)	Bemerkung
z1123a	2,5	42	400-470 nm, Vorlagerung in Argon
z1215a	2,5	42	400-470 nm, Vorlagerung in Sauerstoff
w0118a	3,0	21	
w0205a	2,5	42	
w0229a	1,26	21	
w0316a	1,26	21	Luft einbruch
w0329c	0,89	7,4	Stahlrohr, geschwärzt
w0411a	1,26	10,5	geschwärzt
w0821a	0,89	14,8	Stahlrohr, geschwärzt
w0912a	0,04	21	geschwärzt
w0913a	0,05	8,4	geschwärzt, 2. Bestrahlung
w0917a	1,26	42	geschwärzt, 3. Bestrahlung

Tabelle A.2: Bestrahlungen in Argon

Name	Dosis (kGy)	D (Gy/h)	Bemerkung
w0220a	2,5	42	
w0621a	1,1	8,8	geschwärzt

Tabelle A.3: Bestrahlungen in Luft

A.4.2 Daten in den Abbildungen

Abbildung	Daten
6.1	w0205a, w0220a
6.2	w0917a
6.3	w0821a
6.4	w0411a, w0917a
6.5	w0411a, w0917a
6.6	w0205a
6.7	w0205a, z1123a, z1215a
6.8	w0621a
6.9	w0220a
6.10	w0220a, w0621a
6.11	w0411a
6.12	w0411a
6.31	w0220a, w0411a
6.13	w0220a
6.14	w0220a
6.15	Argon: w0205a, w0229a, w0316a, w0329c, w0411a, w0912a; Luft: w0621a, w0220a

Abbildung	Daten
6.16	w0913a
6.17	w0205a
6.18	R_7 : w0205a, w0229a, w0316a, w0329c, w0411a, w0912a; P : w0205a
6.20	w0913a
6.21	w0913a
6.22	w0411a
6.23	w0205a, w0411a
6.24	w0329c
6.25	w0411a
6.26	w0411a, w0917a
6.27	w0411a, w0917a
6.28	w0917a
6.29	w0917a
6.30	w0220a
6.32	w0621a
6.33	w0621a, w0220a
6.34	Argon: w0205a, w0229a, w0316a, w0329c, w0411a, w0913a; Luft: w0220a, w0621a
6.35	w0205a
6.36	w0917a
6.37	w0229a
6.38	w0229a
6.39	w0220a, w0621a
6.40	w0205a, w0621a
6.41	w0220a

Anhang B

Verwendete Abkürzungen

Definition von Symbolen

Symbol	Bedeutung	Seite
A	Optische Dichte	11
α	Zeitkonstante 1. Ordnung + Käfigmodell	38
β	Zeitkonstante 2. Ordnung + Käfigmodell	35
C	Parameter zur Beschreibung der Bremsstrahlung	4
D	Dosis	9
\dot{D}	Dosisleistung	9
D_1	Dosis zur Bindung gelösten Sauerstoffs	63
$\Delta\mu$	Durch Bestrahlung induzierte Absorption	20
$\Delta\mu_1$	Absorption durch Radikal R_1	40
$\Delta\mu_2$	Absorption durch Radikal R_2	40
$\Delta\mu_{\text{perm}}$	Permanente Absorption	40
$\bar{\Delta}\mu$	Instabiler Anteil der Absorption	35
E_λ	Dekadische Extinktion	21
$E_{n\lambda}$	Natürliche Extinktion	21
ϵ	Absenkung der Sättigung bei Käfigmodell mit Rekombinationen 2. Ordnung	35
ζ	Absenkung der Sättigung bei Käfigmodell mit Rekombinationen 1. Ordnung	38
g_n	Anzahl gebildeter Radikale pro Joule absorbiertes Energie	31
k_n	Reaktionskonstante für Radikalabbau	31
κ		33
μ	Massenschwächungskoeffizient	7
μ_{en}	Massenabsorptionskoeffizient	9

Symbol	Bedeutung	Seite
μ_{tr}	Energieumwandlungskoeffizient	9
ν	Frequenz der Röntgenstrahlung	4
P	Permanente Absorption	57
ρ	Dichte	31
R_n	Radikal der Sorte n	31
$[R_n]$	Konzentration der Radikale der Sorte n	31
$[R_{nS}]$	Sättigungskonzentration der Radikale der Sorte n	32
$\overline{[R_{nS}]}$	erreichte Sättigungskonzentration der Radikale	35
$\sigma(\lambda)$	Wirkungsquerschnitt für die Absorptionsfähigkeit der Radikale	32
$\Sigma(\lambda)$	Optische Absorption pro zugeführter Dosis	33
t_e	Zeitpunkt der Beendigung einer Bestrahlung	39
ϑ_λ	Reintransmissionsgrad	20
T	Transmission	11
T_0	Transmission einer nicht absorbierenden Faser	19
Z	Ordnungszahl	4

Literaturverzeichnis

- [AIC95] AIC SOFTWARE. Manual. Grafton, Massachusetts 01519, USA, 1995.
- [Bar94] R. Barschke. Untersuchungen von Szintillationsfasern für ein Spaghettikalorimeter. Diplomarbeit, Universität Hamburg, II. Institut für Experimentalphysik, 1994.
- [Bic90] Bicron Corporation. Katalog. Newbury, Ohio, 1990.
- [Biç92] M. B. Biçken. Einfluß von Wärmebehandlung und umgebender Gasatmosphäre auf die Strahlenschädigung von Szintillatoren, Wellenlängenschiebern und Lichtleitern. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1992.
- [Bod97] B. Bodmann. Vergleichende Alanin-Dosimetrie und Untersuchung strahleninduzierter Schäden an SCSN38 mit Hilfe der Elektronen-Spin-Resonanz-Spektroskopie. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1997.
- [BPD91] A. Bross und A. Pla-Dalmau. Radiation-Induced Hidden-Absorption Effects in Polystyrene-Based Plastic Scintillators. *ACS Symposium Series: Radiation Effects on Polymers*, 475:578–590, 1991.
- [BS89] I. N. Bronstein und K. A. Semendjajew. Taschenbuch der Mathematik. Zürich, Frankfurt/M, 1989.
- [Bus92] W. Busjan. Untersuchungen von Strahlenschäden an Polymethylmetacrylat. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1992.
- [Clo88] R. Clough. Radiation-Resistant Polymers. *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*, 13:667–708, 1988.
- [Dan96] A. Dannemann. *Untersuchungen zur Strahlungsresistenz polymerer Materialien für den Einsatz in Experimenten der Hochenergiephysik*. Dissertation, Universität Hamburg, 1996.
- [Dys90] N. A. Dyson. X-rays in atomic and nuclear physics. Cambridge, 1990.
- [FR90] J. Falbe und M. Regitz, Hrsg. *Römpp-Chemie-Lexikon, Bd. 3. H-L*. Thieme, Stuttgart, New York, 9. Auflage, 1990.

- [GRO95] H1 SPACAL GROUP. Performance of an Electromagnetic Lead/Scintillating-Fibre Calorimeter for the H1 Detector. *DESY Rote Berichte*, 165, 1995.
- [Har69] L. A. Harrah. ESR of Radicals Produced in ^{60}Co Gamma-Irradiated Polystyrene. *Mol. Crystals and Liquid Crystals*, 9:197–210, 1969.
- [HH93] D. Horstmann und U. Holm. Fluorescence Quenching of Plastic Scintillators in Oxygen. *Radiation in Physics and Chemistry*, 41:395–400, 1993.
- [Joh96] K. Johnson. Private Mitteilungen. Univ. Tallahassee, Florida, 1996.
- [Lad97] R. Ladwig. Untersuchung von Strahlenschäden an Basismaterialien für Szintillatoren und Lichtleiter mittels Transmissionspektroskopie und Elektronenspinresonanz. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1997.
- [Leb67] Ya. S. Lebedev. The Kinetics of Bimolecular Reactions in the Solid Phase. Calculation of the Rates on the Basis of a Cellular Model. *Kinetic and Katalysis*, Seite 213–218, 1967.
- [MB93] A. G. Michette und C. J. Buckley, Hrsg. *X-ray Science and Technology*. Institute of Physics Publishing, Bristol, Philadelphia, 1993.
- [McK81] A. F. McKinlay. *Thermoluminescence Dosimetry*. Hilger, Bristol, 1981.
- [Mey73] *Meyers Physik-Lexikon*. Thieme, Bibliographisches Institut, Mannheim, Wien, Zürich, 1973.
- [Neu92] T. Neumann. Untersuchungen zur Strahlenschädigung von Szintillatoren und Wellenlängenschiebern unter Einfluß von Temperaturbehandlung und verschiedenen UV-Absorbern. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1992.
- [PK92] W. Petzold und H. Krieger. *Strahlenphysik, Dosimetrie und Strahlenschutz, Band 1: Grundlagen*. Teubner, Stuttgart, 3. Auflage, 1992.
- [RH94] J. D. Rickey und K. C. Humpherys. A Thickness-Independent Radiochromic Thin-Film Dosimeter System. *Radiat. Phys. Chem.*, 31:753–756, 1994.
- [Tur95] J. E. Turner. *Atoms, Radiation, and Radiation Protection*. John Wiley & Sons, Inc., New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 2nd Auflage, 1995.
- [WB93] A. Walther und R. Barschke. Studies of Scintillating Fibres for a Spaghetti Calorimeter to be used for the H1 Backward Upgrade Project. *Proceedings of SCIFIC93 Workshop*, 1993.
- [Wic96] K. Wick. Private Mitteilungen. Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1996.

- [Wic97] K. Wick. Private Mitteilungen. Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1997.
- [Wul95] B. Wulkop. Messung von Strahlenschäden in Szintillatoren und Lichtleitern während und nach der Bestrahlung mit UV-Licht und γ -Strahlen. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1995.
- [WWB⁺95] B. Wulkop, K. Wick, W. Busjan, A. Dannemann und U. Holm. On the Formation of Shortlived Absorption Centers During Irradiation of Plastic Scintillators. *Nuclear Physics B (Proc. Suppl.)*, 44:542-546, 1995.
- [Zou97] T. Zoufal. Onlinemessung von Strahlenschäden an Plastikszintillatoren. Diplomarbeit, Universität Hamburg, I. Institut für Experimentalphysik, 1997.

Danksagung

An dieser Stelle bedanke ich mich ganz herzlich bei allen, die zur Erstellung dieser Arbeit beigetragen haben:

Bei Herrn Prof. Dr. K. Wick für die Aufgabenstellung und die wertvollen Anregungen, die er mir während der intensiven Betreuung gegeben hat sowie bei Herrn Dr. U. Holm für die ständige Bereitschaft zu Diskussionen über die nicht immer leicht zu lösenden Probleme.

Bei allen gegenwärtigen und ehemaligen Mitgliedern und Gästen der Arbeitsgruppe Teilchenphysik I des I. Instituts für Experimentalphysik für die außerordentlich fröhliche und produktive Arbeitsatmosphäre, die es an Diskussionen nicht mangeln ließ: M. Berghaus, B. Bodmann, I. Bohnet, G. Buß, Dr. A. Dannemann, F. Faghihi, N. Gendner, W. Grell, A. Hacker, M. Herrmann, D. Hischke, D. Horstmann, S. Jacobs, K. Johnson, H. Kammerlocher, Dr. B. Krebs, D. Kummerow, R. Ladwig, A. Meyer-Larsen, E.-A. Möller, R. Mohrmann, T. Neumann, M. Nowoczyn, I. Peters, A. Oberender, H. Prause, S. Sack, Dr. H. Salehi, S. Schacht, I. Schatz, J. Thiesing, B. Wulkop, M. Zehden und insbesondere T. Zoufal.

Bei allen Mitgliedern der Institutswerkstatt für den freundlichen Umgang und die immer zuverlässige und schnelle Anfertigung der gewünschten Teile.

Bei meinen Eltern, die mir das Physikstudium ermöglicht haben und bei meinen Geschwistern J. Eckardt und D. Wafforne für das Lektorat sowie ganz besonders bei meiner Frau Béatrice für ihre oft von mir beanspruchte Geduld.

Stichwortverzeichnis

Übertragungsreaktion, 18
 $\Delta\mu$, 32

Abschwächlänge
effektive, 90

Absorption
Überlagerung von, 40

Absorptionskonstante, 19

Akzeptanzwinkel, 17

Alanin, 13

Aufbaufaktor, 10

Aufhärtung, 7

Brechungsindex, 19

Bremsstrahlung, 3
Energiespektrum, 5
Frequenzspektrum, 4
in leichten Materialien, 7
maximale Intensität, 4
Photonenspektrum, 5
Wellenlängenspektrum, 4, 5

Bremsstrahlungsverlust, 9

Charakteristische Strahlung, 5
Intensität, 6

Cladding, 17

Diffusion, 68

Dosimetrie
experimentelle, 10
rechnerische, 13

Dosisaufbau, 10

Dosisleistung
der Röntgenröhre, 15
Variation der, 24

Elektronenspinresonanz, 13

Endschaden, 35, 45, 52, 68

Energiefluß, 9

Energieumwandlungskoeffizient, 9

Extinktion, 20

Faser
Aufbau, 17
Verspiegelung, 75

Fluoreszenzlicht
Absorption, 71
Ausbeute, 72
Intensität, 75
Messung, 24, 27
Spektrum, 89

Gelbfärbung von Polystyrol, 45

Initiation, 18, 41

K_{α} -Strahlung, 5
 K_{β} -Strahlung, 5
Käfigmodell, 33, 58, 81
Kettenverzweigungen, 18

Langzeitstabilität, 28, 29

Lichtausbeute
primäre, 72

Massenabsorptionskoeffizienten, 9

Optische Dichte, 11

Peroxiradikale
Erzeugung, 41

Perspex, 11

Phasen
des Absorptionsanstiegs, 48

Photonenfluß, 9

Polystyrol, 17

Propagation, 18, 41

Quenching, 72

Röntgenröhre
Anodenverschleiß, 8
Aufbau, 3
Schwankung der Dosisleistung, 11,
71

Spektrum, 7
Winkelverteilung, 6
Wirkungsgrad, 4

Röntgenstrahlung, 3

Rückgang
der Sättigung, 83

Radiachrome, 11

Radikalabbau
Reaktion erster Ordnung, 40
Reaktion zweiter Ordnung, 39

Radikale
Abbau, 41
Erzeugung, 18, 31, 41

Rauschen
durch Bestrahlung, 25

Reaktionskonstante
Einfluß von Sauerstoff, 60

Reintransmissionsgrad, 20

Rekombination, 31

Rotator, 24

Sättigung
BCF12, 46, 69
Rückgang, 83
Reaktion erster Ordnung, 35
Reaktion zweiter Ordnung, 38
SCSF81(Y7), 79

Sauerstoff
gelöster, 46-49

Sauerstoffeinlaß, 52

Sauerstoffkonzentration
Einfluß auf Schädigung, 55

Sauerstoffverbrauch
notwendige Dosis, 51

SCSF81(Y7)
Absorption, 79

SCSN38
Vergleich mit BCF12, 46, 52, 68

Sekundärelektronen, 8
Reichweite, 8

Sekundärelektronengleichgewicht, 8

Spektrum der Röntgenstrahlung, 7

Stabilität der Messung
BCF12, 28
SCSF81(Y7), 29

Steigung, 35, 36

Termination, 41

Terminierung, 18

TLD, 10
Dosisbereich, 10

Totalreflexion, 17

Transmission, 11

Trennung
der Radikale, 56

Verbrauch von Sauerstoff, 51