

**RETROSPEKTIVE STRAHLENDOSIMETRIE UNTER
VERWENDUNG GEPULSTER PHOTONEN-STIMULIERTER
LUMINESZENZ (PPSL)**

ERWEITERUNG DES MESSBEREICHES HIN ZU DOSEN $< 1\text{mGy}$

BEI ANWENDUNG AN GROBKERAMISCHEM MATERIAL

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN

von der Fakultät für Maschinenbau

der Universität (TH) Karlsruhe

genehmigte

DISSERTATION

von

DIPL. PHYS. MATTHIAS NIEDERMAYER

aus München

**RETROSPEKTIVE STRAHLENDOSIMETRIE UNTER
VERWENDUNG GEPULSTER PHOTONEN-STIMULIERTER
LUMINESZENZ (PPSL)**

ERWEITERUNG DES MESSBEREICHES HIN ZU DOSEN $< 1\text{mGy}$

BEI ANWENDUNG AN GROBKERAMISCHEM MATERIAL

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN

von der Fakultät für Maschinenbau

der Universität (TH) Karlsruhe

genehmigte

DISSERTATION

von

DIPL. PHYS. MATTHIAS NIEDERMAYER

aus München

Eingereicht am:	04. Juni 2002
Tag der Prüfung:	04. Juli 2002
Hauptreferent:	Prof. Dr. Dr. h.c. mult. D. G. Cacuci
Korreferent:	Prof. Dr. A. Bayer
Korreferent:	Priv. Doz. Dr. V. Heinzl

Zusammenfassung

Allen in der retrospektiven Strahlendosimetrie verwendeten Verfahren ist gemeinsam, dass jeweils zu der zu bestimmenden Unfalldosis ein Beitrag detektiert wird, der auf der Dosisleistung durch natürliche Strahlenexposition und dem Alter des jeweiligen Dosimetermaterials beruht. Diese unfalldosisunabhängige Hintergrunddosis, die sog. Altersdosis¹ setzt sich – je nach Dosimetermaterial – aus den α -, β - und γ -Dosisleistungen der natürlichen Radionuklide und aus der Höhenstrahlung zusammen. Für seine Bestimmung war in der Vergangenheit in jedem Einzelfall eine Vielzahl verschiedener Messmethoden notwendig (α -Spektrometrie, β -Zählung, γ -Spektrometrie). Zudem mussten verschiedene Annahmen (z.B. bzgl. des radiologischen Gleichgewichts in der Probe) getroffen werden.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es nun, für Lumineszenz-Messverfahren anhand grobkeramischer Materialien (z.B. Mauerziegel) diese Kombination aus verschiedenen Messmethoden auf ein einziges zu reduzieren. Grobkeramische Materialien bieten sich für die Anwendung in der retrospektiven Dosimetrie aufgrund ihrer fast flächendeckenden Verfügbarkeit in besonderer Weise an. Voraussetzung für die Anwendung ist es, Dosen, die in verhältnismäßig kurzen Zeiträumen akkumuliert werden, messen zu können. Bei typischen natürlichen Dosisleistungen in grobkeramischen Materialien von 2,5 ... 4,5mGy/Jahr und möglichen Messzeiträumen von 1-2 Monaten, ist es unerlässlich, Dosen im Dosisbereich von <1mGy sicher bestimmen zu können. Mithilfe der bisher in der retrospektiven Dosimetrie anhand grobkeramischer Materialien angewandten Verfahren konnten Nachweisgrenzen bis herab zu 10mGy erreicht werden.

In der vorliegenden Arbeit wurde ein Verfahren entwickelt, das nach Exposition gegenüber γ -Strahlung die Messung kleiner Strahlendosen in der retrospektiven Dosimetrie anhand moderner Ziegel erlaubt (bis hin zu 500 μ Gy). Das Verfahren beruht auf dem der

¹ Der Begriff der Altersdosis wurde bereits früher in dem hier verwendeten Sinne angewandt, wurde aber durch die ICRU (International Commission for Radiation Units) durch den Begriff der Hintergrunddosis ersetzt. In dieser Arbeit soll er aber dennoch Anwendung finden, da er die physikalischen Gegebenheiten (den durch das Alter eines Ziegels gegebenen, nicht unfalldosisabhängigen Anteil an der Gesamtdosis in einer Ziegelsteinprobe) nach Ansicht des Autors in diesem konkreten Fall besser beschreibt.

Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL), bei dem die Information über die Höhe einer Dosis, der das Probenmaterial zuvor ausgesetzt war, durch Stimulation der Probe mit Photonen abgerufen wird. Die Information über die Höhe einer Dosis ist dabei in Form von auf energetisch ausgezeichnete Niveaus angeregten Elektronen im Probenmaterial gespeichert. Eine besondere Eigenschaft des hier verwendeten Verfahrens ist die dosis- und probenunabhängige Art der Unterdrückung des Messuntergrundes durch Pulsung des Stimulationslichtes: gepulste Photonen-stimulierte Lumineszenz - PPSL. Bei dieser Methode wird der Untergrund zeitnah zur Messung des Gesamtsignals, das während der Pulse gemessen wird, in den Zeiträumen zwischen den Pulsen ermittelt. Dies reduziert die Notwendigkeit von Einzelfallbetrachtungen und bildet so die Voraussetzung für die Standardisierung der erarbeiteten Messvorschrift. Die in der vorliegenden Arbeit vollzogene Weiterentwicklung der bisher bekannten Messverfahren ist die Nutzbarmachung einer Messtechnik, die ursprünglich für die Überprüfung von Lebensmitteln auf Behandlung mit ionisierender Strahlung entwickelt wurde.² Die Nutzbarmachung beruht auf der Entwicklung geeigneter Probenpräparationsverfahren, der Entwicklung geeigneter Verfahren für die notwendige, der eigentlichen Messung vorgeschaltete Vorbehandlung der Proben sowie der Untersuchung, inwiefern sich die ermittelten Messparameter verallgemeinern lassen.

Weiterhin wurde eine Reihe von Proben moderner Ziegel auf regionale Übereinstimmung in ihren dosimetrischen Eigenschaften geprüft. Diese ist sowohl für eine Standardisierung des Messverfahrens als auch für die Frage nach der zu erwartenden Empfindlichkeit der Probe und mithin der Planung einer Messung von großer Bedeutung.

² Eine derartige Behandlung mit ionisierender Strahlung wird gelegentlich bei bestimmten Lebensmitteln wie Gewürzen, einigen Sorten Obst sowie Meeresfrüchten zur Verlängerung der Haltbarkeit durchgeführt. Sie ist nach EU-Recht erlaubt, aber kennzeichnungspflichtig.

Inhalt

1.	EINLEITUNG	1
1.1	Hintergrund der Arbeit: Die retrospektive Dosimetrie und ihre Verfahren	1
1.2	Messproblem	3
1.3	Stand der Technik: Messmethodik	6
1.4	Stand der Technik: Baumaterialien als Probenmaterial	10
1.5	Ziel der Arbeit	11
2.	GRUNDLAGEN DER METHODE DER PHOTONEN-STIMULIERTEN LUMINESZENZ	14
2.1	Voraussetzung: Das Kristallgitter	14
2.2	Der Kristall als Dosimeter: Speicherung der Dosisinformation	16
2.3	Messung des dosisabhängigen Signals	19
2.3.1	Die Methode der Thermolumineszenz (TL)	20
	Einschub: Theoretische Überlegungen zu Thermolumineszenz	24
2.3.2	Die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL)	28
	Einschub: Theoretische Überlegungen zu Photonen-stimulierter Lumineszenz	30
2.3.3	Sonderfall: Die Methode der infrarot stimulierten Lumineszenz (IRSL) an Feldspäten	31
	Einschub: Theoretische Überlegungen zu infrarot stimulierter Lumineszenz	32
2.3.4	Die Methode der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz (PPSL)	34
2.3.4.1.	Beschreibung der Methode und Erläuterung ihrer Vorzüge	34
2.3.4.2.	Einwände und Vorbehalt gegen die Methode	40
2.4	Die Interpretation des dosisabhängigen Signals	43
2.4.1	Das Additiv-Verfahren	44
2.4.2	Das Regenerativ-Verfahren	45
2.4.3	Das Single-Aliquot- und Multiple-Aliquot-Verfahren	46
2.5	Die Bestimmung der Altersdosis	47
3.	GROBKERAMISCHE BAUSTOFFE: BESTANDTEILE UND PRODUKTION	50
3.1	Definitionen	50
3.2	Rohstoffe	51

3.2.1	Kleines Ziegelglossar	51
3.2.2	Notwendige Eigenschaften	53
3.2.3	Bestandteile	53
3.2.3.1.	Bildsame Bestandteile	53
3.2.3.2.	Unbildsame Bestandteile	54
3.3	Rohstoffarten	54
3.3.1	Löss	54
3.3.2	Auenlehme	56
3.4	Verwendung und Verbreitung	56
3.4.1	In der Geschichte	56
3.4.2	In der Moderne (nach 1945)	57
3.4.3	Verteilung der Ziegeleidichte über Deutschland	58
3.4.4	Konsequenzen für den regionale Verbreitung von Ziegeln in Deutschland	58
3.5	Konsequenzen für die Dosisrekonstruktion mittels PPSL	59
4.	MATERIAL UND METHODE	61
4.1	Messprogramm	61
4.2	Proben	64
4.3	Technische Ausstattung	65
4.3.1	Das Gerät TL/OSL-DA 12 (Risø)	66
4.3.1.1.	Infrarot-Dioden zur Stimulation	67
4.3.1.2.	Heizvorrichtung	67
4.3.1.3.	Interne Bestrahlungseinrichtung	68
4.3.1.4.	Filter	68
4.3.1.5.	Sekundärelektronenvervielfacher	70
4.3.1.6.	Auswerteeinrichtung	70
4.3.2	Das Gerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“ („SURRC-PPSL-Gerät“)	71
4.3.2.1.	Infrarote Dioden zur Stimulation	72
4.3.2.2.	Filter	72
4.3.2.3.	Sekundärelektronenvervielfacher	72
4.3.2.4.	Auswerteeinrichtung	73
4.4	Probenaufbereitung	74
4.4.1	Zerkleinern der Proben	74
4.4.2	Mineralientrennung	77
4.4.3	Aufbringen auf Probenträger	78
4.5	Durchführung von Bestrahlungen	78
5.	ERGEBNISSE: DOSIMETRISCHE EIGENSCHAFTEN VON GROBKERAMIK UNTER VERWENDUNG VON PPSL ANHAND DES FELDSPATGEHALTES	80
5.1	Vorversuche: Probeneigenschaften gegenüber Thermolumineszenz	80
5.1.1	Die Glowkurve - Abhängigkeit des Messsignals von der Probentemperatur	80
5.1.2	Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung	82
5.1.3	Fallen und Rekombinationszentren: Physikalische Eigenschaften	85
5.1.3.1.	Energie	85
5.1.3.2.	Lebensdauer	87
5.1.4	Vorheizverfahren	89
5.1.4.1.	Vorheiztemperatur	89
5.1.4.2.	Vorheizdauer	89

5.2	Probeneigenschaften gegenüber Photonen-stimulierter Lumineszenz	91
5.2.1	Löschen durch Infrarotstimulation	92
5.2.2	Löschen von Restsignalen	92
5.2.2.1.	Löschtemperatur	93
5.2.2.2.	Löschdauer	94
5.2.3	Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung	94
5.3	Bestimmung der Nachweisgrenze der Messmethode unter Verwendung der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz	96
5.4	Bestimmung der Lebensdauer des Messsignals	99
5.4.1	Thermische Stabilität	99
5.4.2	„Anomales Fading“	100
5.4.2.1.	Signalverlust im Zeitbereich einiger Tage	100
5.4.2.2.	Signalverlust im Zeitbereich einiger Monate	100
6.	UNSICHERHEIT UND NACHWEISGRENZE VON PPSL IN DER RETROSPEKTIVEN DOSIMETRIE	101
6.1	Unsicherheit bei PPSL-Messungen in der retrospektiven Dosimetrie	102
6.1.1	Generelle Betrachtung	102
6.1.2	Messunsicherheit der PPSL-Messung	105
6.1.2.1.	Die Einzelmessung	105
6.1.2.2.	Die Messmethode: Additiv- und Regenerativ-Methode	106
6.1.2.3.	Der Umgang mit der Messung von Vergleichsbestrahlungen: Multiple- und Single-Aliquot-Methode	110
6.1.3	Messunsicherheit bei der Bestimmung der Altersdosis	111
6.1.3.1.	Zur Dosisleistung	111
6.1.3.2.	Zum Alter der Probe	113
6.1.4	Weitere Quellen von Unsicherheiten bei der Bestimmung der Effektivdosis	114
6.1.4.1.	Unsicherheit bei der Abschätzung des Ortsdosisfeldes	114
6.1.4.2.	Zusatzbemerkung: Probenahme	115
6.1.4.3.	Unsicherheit bei der Übertragung des Ortsdosisfeldes auf die effektive Dosis einer Einzelperson oder Bevölkerungsgruppe	116
6.2	Nachweisgrenze bei PPSL-Messungen in der retrospektiven Dosimetrie	117
6.2.1	Nachweisgrenze bei Verwendung der PPSL-Methode zur Bestimmung von Strahlendosen	117
6.2.2	Weitere Einflüsse auf die Nachweisgrenze bei Bestimmung von Unfalldosen	118
6.3	Zusammenfassende Betrachtung	119
6.3.1	Die Abschätzung der radiologischen Belastung der Bevölkerung des Altaigebirges durch die Kernwaffenversuche der Sowjetunion	121
6.3.2	Die Abschätzung der Unfalldosen im Falle des radiologischen Unfalls von Kiisia (Estland)	121
7.	DISKUSSION UND AUSBLICK	123
7.1	Zusammenfassung der Ergebnisse	123
7.2	Schlussfolgerungen	126
7.3	Ausblick	128

ANHANG	129
A 1. GLOWKURVEN, AUSLEUCHTKURVEN UND MESSAUSWERTUNGEN	129
A 1.1. Zum Kap. 5.1: Vorversuche: Probeneigenschaften gegenüber Thermolumineszenz	129
A 1.1.1 Gemittelte Glowkurven sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Abhängigkeit des Messsignals von der Proben­temperatur	129
A 1.1.2 Repräsentative Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und TL-Messung	134
A 1.1.3 Glowkurven und deren Anpassungen sämtlicher untersuchter Proben zur Bestimmung der Lebensdauer des Signals des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus	144
A 1.1.4 Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Bestimmung geeigneter Vorheizdauern	149
A 1.2. Zum Kap. 5.2: Probeneigenschaften gegenüber Photonen-stimulierter Lumineszenz	159
A 1.2.1 Repräsentative Ausleuchtkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und PSL-Messung	159
A 1.3. Zum Kap. 5.3: Bestimmung der Nachweisgrenze der Messmethode unter Verwendung der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz	169
A 1.3.1 Dosis-Wirkungs-Beziehung für sämtliche untersuchte Proben unter Verwendung von PPSL	169
A 2. PHYSIKALISCH-CHEMISCHE METHODEN DER DOSISREKONSTRUKTION	174
A 2.1. Die Thermolumineszenz-Methode (TL)	176
A 2.2. Die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL)	178
A 2.3. Die Chemilumineszenz-Methode (CL)	179
A 2.4. Die Elektronspinresonanz-Methode (ESR)	181
A 2.5. Vergleich der Methoden	182
A 3. DIE METHODE DER PHOTONEN-STIMULIERTEN LUMINESZENZ (PSL) ALS ANWENDUNG IN DER DOSISREKONSTRUKTION: HISTORIE UND ENTWICKLUNG	186
ABBILDUNGEN	191
TABELLEN	194
LITERATUR	195
DANKSAGUNG	205

1. Einleitung

1.1 Hintergrund der Arbeit: Die retrospektive Dosimetrie und ihre Verfahren

Unter Strahlendosimetrie versteht man jenen „Zweig der Strahlenmesstechnik, bei dem die Dosis oder Dosisleistungen an einzelnen Punkten bzw. die Dosisverteilung in größeren Gebieten (...) gemessen oder berechnet wird“ [LENK, 1989]. Dazu gibt es viele verschiedene Arten und Messtechniken. Gliedert man das weite Feld der Dosimetrie nach dem Zeitraum der Ermittlung, so ergibt sich eine Einteilung in die „prospektive Dosimetrie“ (vor der Strahlenexposition mithilfe mathematischer Berechnungen und Simulationen), in die „operationelle Dosimetrie“ (während der Strahlenexposition) und in die „retrospektive Dosimetrie“ (nach der Strahlenexposition) [BAYER, 2001]. Dabei umfasst die „operationelle Dosimetrie“ auch „pseudo-operationelle“ Mess- und Überprüfungsverfahren, wobei die Dosis zwar nicht genau während – also zeitgleich – aber dennoch im regelmäßigem Rhythmus bestimmt wird. Diese Verfahren sind zwar im eigentlichen Sinn des Wortes ebenfalls retrospektiv, werden aber in dieser Einteilung zur operationellen Dosimetrie gezählt.³ Die Verfahren der operationelle Dosimetrie sind somit generell dazu geeignet, die Strahlendosis an einem Ort im Sinne des Strahlenschutzes zu überwachen.

„Retrospektive Dosimetrie“ umfasst hingegen all die dosimetrischen Mess- und Überprüfungsverfahren, die an Orten oder für Personen eingesetzt werden können, für die keine operationellen dosimetrischen Messungen zur Verfügung stehen.

Die retrospektive Dosimetrie weist somit generell aus, dass sie auf Dosimetermaterialien zurückgreifen muss, die ursprünglich nicht als solche gedacht waren. Dabei liegt es in der Natur der Sache, dass die Qualität der dosimetrischen Eigenschaften der eingesetzten Dosimetermaterialien nicht die der in der operationellen Dosimetrie eingesetzten, in der

³ „Operationell“ kann streng genommen nur die fortwährende Erhebung der jeweils aktuellen Dosisleistung und deren Aufintegration gegenüber einem Referenzzeitpunkt bedeuten; dem gegenüber steht „pseudo-operationell“ für die Erhebung von Dosen mittels aufintegrierenden Dosimetern und deren regelmäßige und sich in relativ kurzen Zeitabständen wiederholenden Messung. (Beispiel: Filmplaketten)

Regel optimierten Dosimeter (z.B. Filmdosimeter) erreichen kann. Eine wesentliche Eigenschaft ist dabei die Empfindlichkeit gegenüber der Strahlung.

In Frage kommen Materialien, die der Mensch mit sich trägt (am Körper oder als ein Bestandteil seines Körpers), oder die in einer von Menschen bewohnten Umgebung oder in ihrem Arbeitsumfeld auftreten. Zudem müssen sie bei Exposition gegenüber ionisierender Strahlung eine dosisabhängige, quantifizierbare Veränderung aufweisen. Derartige Materialien sind z.B. organische Zellen, Zahnschmelz oder Kristalle einiger natürlichen Minerale.

Bei den Methoden, mit denen die dosisabhängigen Veränderungen nachgewiesen bzw. quantifiziert werden können, handelt es sich um biologische Methoden und um physikalisch-chemische Methoden. Zu den biologischen Methoden zählt beispielsweise FISH (Fluoreszenz In Situ Hybridisierung) – eine Methode, mit der Veränderung von Art und Zahl von Chromosomen (die das Erbgut tragenden Bestandteile von organischen Zellen) in organischen Zellen analysiert werden [STEPHAN, 2001]. Zu den physikalisch-chemischen Methoden zählen die Messung der elektro-paramagnetischen Resonanz (EPR) – einer Methode, mit der die chemische Veränderung des Zahnschmelzes untersucht wird [JACOB, 2001] – und sämtliche Lumineszenz-Methoden, die alle strahlungsbedingte elektronische Veränderungen in der Kristallstruktur natürlicher Minerale zur Grundlage haben. Nach der Methode, mit der die dosisabhängige Information vom Probenmaterial abgerufen wird, werden die Lumineszenz-Methoden in die Methode der Thermolumineszenz (TL), der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL) sowie der Chemilumineszenz (CL) eingeteilt:

Im Fall von Thermolumineszenz TL ist das Probenmaterial mit Wärme zu stimulieren, bei Photonen-stimulierter Lumineszenz PSL mit Licht geeigneter Wellenlänge (= Photonen geeigneter Energie) und bei Chemilumineszenz CL durch Lösen des Kristalls (d.h. Zuführen von Lösungsenergie) [DALHEIMER *et al.*, 2001].⁴

⁴ Historisch bedingt hat sich bei den verschiedenen Begriffen Inkonsistenzen eingeschlichen: Formal korrekt müsste es heißen „thermisch stimulierte Lumineszenz“ und „chemisch stimulierte Lumineszenz“ und in den Abkürzungen „TSL“ und „CSL“. diese Begriffe und Abkürzungen wurden aber nie verwendet, daher folgt auch diese Arbeit dem allgemein üblichen Sprachgebrauch.

Umgekehrt hat sich statt „Photonen-stimulierter Lumineszenz“ vielfach die Kurzfassung „Photolumineszenz“ eingebürgert, die Abkürzung „PSL“ wurde aber stets beibehalten. Weiterhin wird von vielen Labors der Begriff „optisch stimulierte Lumineszenz“, Abk. „OSL“, verwendet; hierbei handelt es sich um absolute Synonyme zu „Photonen-stimulierter Lumineszenz“ und „PSL“.

Ein Vergleich sämtlicher physikalisch-chemischer Methoden findet sich im Anhang (siehe Anhang A 2).

1.2 Messproblem

An allen Orten, an denen mit einer gegenüber der natürlichen Strahlenbelastung erhöhten Dosis gerechnet werden muss (z.B. in Kernkraftwerken oder in Labors, in denen mit radioaktiven Stoffen umgegangen wird), findet dosimetrische Überwachung operationell oder pseudo-operationell statt. Wenn aber Strahlung an Orten auftritt oder möglicherweise aufgetreten ist, an denen keine Überwachung stattfand, kann es erforderlich sein, die Dosen an diesen Orten im Nachhinein, d.h. retrospektiv festzustellen. In diesen Fällen sind dann Methoden der retrospektiven Dosimetrie einzusetzen.

Anlass für diese Entwicklung war einerseits die Notwendigkeit, nach sich bereits ereignet habenden Katastrophen die Strahlendosen, denen die Bevölkerung ausgesetzt war, zu quantifizieren, andererseits der Wunsch, für zukünftige Ereignisse geeignete Verfahren zur Verfügung zu haben, um ggf. aufgrund der erzielten Messergebnisse schnell medizinische oder administrative Maßnahmen ergreifen zu können. Beispiele solcher Katastrophen in der Vergangenheit sind die Exposition der Bevölkerung nach den Atombombenabwürfen über Hiroshima und Nagasaki (1945), die Exposition der Bevölkerung infolge der Unfälle auf dem Gelände der Produktionsstätten von Mayak bei Tscheljabinsk im Südrural (1957, 1963) oder der Reaktorunfall von Tschernobyl (1986). Eine intensive dosimetrische Aufarbeitung der Katastrophen von Hiroshima und Nagasaki findet seit den 60er Jahren und immer noch statt. Erste Ergebnisse wurden 1963 unter Verwendung von TL an Dachziegeln ermittelt [HIGASHIMURA *et al.*, 1963], was als eine der ersten erfolgreichen Anwendungen der retrospektiven Dosimetrie gelten dürfte.

Strahlendosen, die entweder zu administrativen oder medizinischen Maßnahmen führen müssten, liegen im Bereich einiger Gy⁵. Darüber hinaus können kleinere Dosen bis hin zu 10mGy in rechtlichen Fragen (z.B. Schadensersatz- oder Schmerzensgeld-Ansprüche) von Bedeutung sein, bzw. in wissenschaftlichem Interesse (z.B. epidemiologische Studien)

⁵ 1Gray = 1Gy = $1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$; Maß für die je Masse absorbierte Energie, Einheit der physikalischen Strahlendosis
(= Energiedosis)

stehen. Mit den Messmethoden der retrospektiven Dosimetrie lassen sich Strahlendosen in diesem Dosisbereich ermitteln.

In jüngerer Vergangenheit zeigte sich nun eine neue Fragestellung in der retrospektiven Dosimetrie: In der Umgebung von kerntechnischen Anlagen treten immer wieder – berechtigt oder nicht – Vermutungen von erhöhten Strahlenexposition der Bevölkerung mit der entsprechenden biologischen Wirkung und die damit verbundenen Ängste und Befürchtungen auf. In diesen Fällen handelt es sich oftmals nicht um die Befürchtung von größeren Störfällen, sondern um die Angst vor kontinuierlicher Exposition mit kleinen Dosen. Die nachzuweisenden Dosen sind bei diesen Szenarien erheblich kleiner als für die bisherige Anwendung der retrospektiven Dosimetrie, die in einer Unfallsituation nötig wird. Bei dem betroffenen Dosisbereich handelt es sich um einen Bereich von einigen $100\mu\text{Gy}$ bis hin zu einigen mGy und liegt damit weit unter der Nachweisgrenze der bisher entwickelten Methoden.

Um dieser Problematik gerecht zu werden, gilt es, die Nachweisgrenze bis in den Bereich von wenigen $100\mu\text{Gy}$ zu senken. Hier liegen nun aber auch die Grenzen der retrospektiven Dosimetrie. Der Grund dafür ist, dass das Dosimetermaterial nicht nur der Dosis des zu untersuchenden Ereignisses – im Folgenden D_{Unfall} , da es sich bei einem derartigen Ereignis in der Regel um einen Unfall handelt – ausgesetzt ist, sondern zudem noch der Strahlung der natürlichen Radioaktivität. Diese leistet einen Beitrag D_{nat} , der unter Umständen bedeutend größer als D_{Unfall} ist. Der Beitrag kann somit insbesondere bei kleinen Unfalldosen und hinreichend alten Proben leicht in der Größenordnung der Unfalldosis selbst oder sogar darüber liegen. Er ist zumal bei kleinen Unfalldosen unbedingt zu berücksichtigen. Er kann jedoch nur berücksichtigt werden, wenn die natürliche Dosisleistung durch Messung und/oder Rechnung bestimmt werden kann und der Zeitraum, über den diese aufintegriert wurde, bekannt ist. Dies setzt voraus, dass die Information über noch früher applizierte Dosen zu einem bekannten Zeitpunkt „auf Null gesetzt“, d.h. gelöscht wurden.⁶

⁶ Die Zeit, die seit diesem „Löschvorgang“ verstrichen ist, heißt im Folgenden „Alter des Dosimetermaterials“ T_{Alter} . Entsprechend soll die in dieser Zeit aufgrund natürlicher Radioaktivität applizierte Dosis „Altersdosis“ D_{Alter} heißen (vgl. Fußnote 1, S. i). Die physikalischen Mechanismen dieses „Löschvorganges“ hängen von Dosimetermaterial und Untersuchungsmethode ab. Mit Kenntnis des Zeitpunktes des Löschvorganges und der Dosisleistung der natürlichen Radioaktivität im Dosimetermaterial lässt sich der Dosisbeitrag der natürlichen Radioaktivität ermitteln.

Die Bestimmung der Dosisleistung der natürlichen Radioaktivität ist üblicherweise mit einer Mehrzahl von Messverfahren und Annahmen verbunden. Eine Senkung der Nachweisgrenze in der retrospektiven Dosimetrie bietet somit über die pure Möglichkeit des Ermitteln geringerer Dosen D_{Unfall} hinaus den Vorzug, die Dosisleistung der natürlichen Radioaktivität mit einer einzelnen Methode durchzuführen. Die Verfahrensweise wäre dann, das Dosimetermaterial künstlich auf Null zu setzen (d.h. die Information über früher applizierte Dosen künstlich zu löschen) und die durch die natürliche Radioaktivität applizierte Dosis $D_{\text{nat},1}$ nach einem – aufgrund der reduzierten Nachweisgrenze verhältnismäßig kurzem – Zeitraum Δt_1 festzustellen. Die für die Ermittlung der gesuchten Unfalldosis notwendige Kenntnis der Dosisleistung der natürlichen Radioaktivität ergibt sich dann aus dem Quotienten der Dosis $D_{\text{nat},1}$ und der Dauer des Zeitraums Δt_1 .

Aus dem Wunsch nach der Messmöglichkeit kleinerer Unfalldosen einerseits bzw. nach der Verbesserung der Messmethode der Altersdosis durch Reduktion der Anzahl der nötigen Messverfahren auf nur ein einziges andererseits ergibt sich als ein Ziel der vorliegenden Arbeit die Reduktion der Nachweisgrenze in der retrospektiven Dosimetrie.

Ein weiteres Ziel der Arbeit ergibt sich aus dem Wunsch, ein Messverfahren zur Verfügung zu haben, das in einem Ereignisfall geeignet ist, möglichst flächendeckend retrospektive Dosimetrie durchführen zu können: Als ein für dieses Ansinnen besonders günstiges Probenmaterial bieten sich grobkeramische Materialien⁷ in Form von Ziegelprodukten an. Diese finden in vielen Regionen als Baumaterial sowohl in einer von Menschen belebten Umgebung als auch in ihrem Arbeitsumfeld Anwendung. Grobkeramische Produkte enthalten in der Regel Quarz oder Feldspat, beides Minerale, anhand derer retrospektive Dosimetrie unter Verwendung von TL oder PSL möglich ist. Es ist daher Ziel der Arbeit, ein möglichst standardisiertes Messverfahren zu ermitteln und festzustellen, in wie weit und unter welchen Bedingungen sich Dosimetermaterialien gleich und evtl. vorhersagbar verhalten. Eine derartige Information ist bei Planung einer Messung oder Messkampagne bzw. bei Interpretation der gewonnenen Ergebnisse von großer Bedeutung.

⁷ Unter Grobkeramik sind aus nicht weiter raffinierter Tonerde bei nicht allzu hohen Temperaturen (ca. 900°C – 1000°C) gebrannte Materialien zu verstehen, z.B. Mauerziegel, Dachpfannen, irdene Blumentöpfe, etc. Grobkeramik stellt nur geringe Ansprüche an das Rohmaterial; grobkeramische Produkte sind damit nahezu überall auf der Welt anzutreffen.

1.3 Stand der Technik: Messmethodik

Beim Vergleich verschiedener Methoden miteinander kommen als Vergleichskriterien Machbarkeit und Nachweisgrenze in Betracht. Aufgrund ihrer weiten Verbreitung sind in der vorliegenden Arbeit als Probenmaterial ausschließlich grobkeramische Produkte vorgesehen (vgl. Kap. 1.2). Da für die retrospektive Dosimetrie anhand dieser Materialien sowohl TL als auch PSL als Methode in Frage kommt, kann die Machbarkeit der Dosisrekonstruktion im Sinne der Durchführbarkeit für jede der genannten Methoden vorausgesetzt werden.

In den letzten Jahren wurden eine Reihe von Techniken für Probenaufbereitung und eine Vielfalt von Messverfahren entwickelt, die jeweils für das gegebene Messproblem und die im Einzelfall vorhandenen Proben optimiert waren. Der Gehalt einer Probe an Feldspat oder Quarz und auch die Korngrößen, in denen das jeweilige Material vorkommt, können über einen großen Bereich variieren. Daher lässt sich keine generelle Aussage über ein für alle grobkeramischen Proben optimiertes Messverfahren angeben. Für die einzelnen Methoden wurden folgende Nachweisgrenzen gefunden:

für Thermolumineszenz TL: ca. 10mGy
[BAILIFF *et al.*, 2000],

für Photonen-stimulierte Lumineszenz PSL: ca. 100mGy
[NIEDERMAYER, GÖKSU, DALHEIMER & BAYER, 2000].

Die Messungen in diesem niederen Dosisbereich heben im Fall von TL auf den grobkörnigen Quarzanteil ab, der nicht notwendigerweise in jeder Probe zu finden ist; die Messungen im Fall von PSL heben auf den feinkörnigen Anteil ab, der aus einer Mischung aus Feldspat und anderen Mineralen besteht und in jeder Probe zu finden ist. In der Literatur finden sich aber auch Hinweise von Nachweisgrenzen bei Verwendung von PSL, die in der Größenordnung der von TL liegen [HASKELL *et al.*, 1993].

Um eine weitere Verbesserung der Nachweisgrenze zu erreichen, also Signale, die auf noch geringeren Dosen beruhen, zu messen, bietet es sich an, die in einer einzigen Messung verwendete Probenmenge zu erhöhen. Bei TL, wie aus Kap. 2.3.1. deutlich werden wird, ist ein genauer, reproduzierbarer und für alle an der Messung beteiligten Kristalle gleichförmiger Verlauf der Proben temperatur unerlässlich. Dazu wird die Probe möglichst in einer Einkornlage auf einem Probenträger verteilt, der dann gleichmäßig

geheizt wird. Eine Vergrößerung des Probenträgers macht es technisch aufwändiger, einen für alle an der Messung beteiligten Kristalle gleichförmigen Verlauf der Probentemperatur zu gewährleisten. Im Gegensatz dazu ist es technisch einfacher, die für PSL notwendige Bedingung eines homogenen Photonenflusses über größere Querschnittsflächen zu gewährleisten. Daher scheint diese Methode für die Verbesserung der Nachweisgrenze als geeignet.

Zudem zeichnet sich die PSL-Methode gegenüber der TL-Methode durch eine Reihe weiterer Vorzüge aus, die eine Weiterentwicklung der PSL-Methode sinnvoll erscheinen lassen:

- 1) Durch die Zuführung von Wärmeenergie können sich die physikalischen Eigenschaften einiger Minerale ändern. Ein häufig beobachtetes Phänomen ist die Änderung der Empfindlichkeit gegenüber der Dosis, in der Regel hin zu höherer Empfindlichkeit; man spricht von „Sensitivierung“. Beiden Methoden, TL und PSL, ist gemeinsam, dass Vergleichsmessungen nach Bestrahlungen mit definierten Dosen durchgeführt werden müssen. Sollen diese an ein und derselben Probe mittels TL durchgeführt werden, so ist z.B. im Fall einer Sensitivierung eine Korrektur nötig, deren Ermittlung nur messtechnisch möglich ist, die also somit per se (mess)fehlerbehaftet ist und somit zur Unsicherheit des Ergebnisses beiträgt. Eine Erhitzung des Materials kann zwar auch im Fall von PSL hilfreich sein, z.B. um ein Signal gezielt zu löschen oder um die Messzeit zu verkürzen, ist aber nicht zwingend notwendig. Somit kann besonders in Fällen, in denen das Probenmaterial in Verdacht steht, seine physikalischen Eigenschaften durch Erhitzen zu verändern, ein Ergebnis erzielt werden, das in Einklang mit der physikalischen Theorie steht und das frei von Unsicherheiten etwaiger Korrekturen ist. Das Phänomen, dass sich die physikalischen Eigenschaften während des Messprozesses ändern, wird bei PSL bedeutend seltener beobachtet [AITKEN, 1998]; die Gefahr, die davon ausgeht, ist mithin erheblich geringer.
- 2) Aufgrund der Tatsache, dass es sich bei PSL um einen Prozess handelt, der über eine, von dem jeweiligen Probenmaterial abhängigen Zeitdauer anhält, sind auch Messungen möglich, die kürzer sind als eben jene Zeitdauer. Dabei wird im Allgemeinen nur ein – nach Möglichkeit – kleiner Teil des Signals ausgelesen und somit gelöscht. Weitere Nachmessungen an ein und derselben Teilprobe sind somit möglich. Diese Option besteht im Falle von TL nicht: ein Signal kann nur einmal aus-

gelesen werden und ist dann gelöscht. Somit ist mit PSL eine Verifizierung einer Messung zu einem späteren Zeitpunkt oder durch andere Labore möglich.

- 3) Ein weiterer Vorzug, dessen Anwendung in dieser Arbeit und in diesem Zusammenhang nicht zum Tragen kommt, ist, dass durch die Vermeidung sehr hoher Temperaturen während der Messung die Durchführung der Messung in Stickstoffatmosphäre nicht notwendig ist. Diese Notwendigkeit ist im Fall von TL durchaus gegeben, da ansonsten während des Heizvorgangs chemische Oberflächeneffekte auftreten können, die Störsignale hervorrufen. Der Verzicht auf Stickstoffversorgung vereinfacht die Messapparatur erheblich und macht den Einsatz vor Ort möglich.

Trotz dieser bemerkenswerten Vorzüge gegenüber der TL-Methode hat die PSL-Methode auch einen Nachteil: der Untergrund des Messsignals ist aufgrund der physikalischen Eigenschaften erheblich schwerer und mit deutlich geringerer Präzision festzustellen als der Messuntergrund einer TL-Messung. Dies liegt vor allem daran, dass das Messsignal der PSL-Messung mit zunehmender Messdauer abnimmt und einem Grenzwert zustrebt. Dieser repräsentiert den Messuntergrund und ist aus der Einzelmessung sehr schwer zu evaluieren. Dies gilt im Besonderen bei sehr kleinem Messsignal, d.h. bei sehr geringen Dosen.

Zu Beginn der 90er Jahre wurde am „Scottish University Research and Reactor Centre“ SURRC⁸ ein Messverfahren entwickelt, das unter Anwendung von Photonen-stimulierter Lumineszenz PSL sehr kleine Messsignale erkennen sollte. Die Anwendung lag dabei in der Überprüfung von Lebensmitteln auf Behandlung mit ionisierender Strahlung [SANDERSON *et al.*, 1994]. Der signaltragende Bestandteil dabei sind Minerale in Form von Stäuben, die auf oder in den zu messenden Lebensmitteln ruhen oder anhaften. Somit sind sehr kleine Signale und somit niedere Signal-zu-Untergrund-Verhältnisse zu erwarten. Entsprechend wichtig ist eine korrekte Untergrundbestimmung. Bei den gängigen PSL-Verfahren wird zur Untergrundbestimmung die Probe so lange der Stimulation mit Licht ausgesetzt, bis das gesamte dosisabhängige Signal gelöscht ist und nur noch der Untergrund detektiert wird. Der in aller Regel unbekannte Signalverlauf mit der Zeit

⁸ Scottish University Research and Reactor Centre SURRC, Scottish Enterprise Technology Park, Rankine Avenue, East Kilbride, Glasgow G75 0QF, Schottland

erschwert die Untergrundbestimmung und macht in vielen Fällen eine Einzelfallbetrachtung nötig.

Aufgrund sehr großer zu prüfender Lebensmittelmengen, lag es nun in der Absicht der schottischen Forscher, ein standardisiertes Verfahren zu entwickeln, das die Zahl nötiger Einzelfallbetrachtungen möglichst gering hält und das somit unabhängig von der Dauer der Stimulation ist. Um dies zu erreichen wurde die Bestimmung des Untergrundes von der Bestimmung des Gesamtsignals zeitlich getrennt. D.h. es wurde eine bestimmte Dauer definiert, während der das Gesamtsignal bei Photonenstimulation gemessen wurde, und während einer Zeitspanne derselben Dauer das Signal *ohne* Photonenstimulation gemessen. Bei diesem Signal handelt es sich ausschließlich um den Untergrund. Die Differenz der beiden Messungen ergibt das – rein dosisabhängige – „Nettosignal“. Wichtig dabei ist, dass beide Zeitspannen gleich sind. Da es sich zeigte, dass der Untergrund im Verlauf einer Messung, deren Dauer im Bereich von einigen Sekunden bis einigen Minuten liegt, auch unter Laborbedingungen deutlichen Schwankungen ausgesetzt sein kann⁹, wurde als Lösung nicht die Zweiteilung der Messung in Teil 1 – Messung des Gesamtsignals – und Teil 2 – Messung des Untergrundes – gefunden, sondern die Pulsung des Stimulationslichtes eingeführt. Die Untergrundermittlung kann dann in den Phasen zwischen den Stimulationspulsen erfolgen. Nicht wichtig war den Entwicklern jedoch die lineare Abhängigkeit der Signalhöhe von der Dosis, da sie lediglich eine Ja/Nein-Entscheidung (bestrahlt / nicht-bestrahlt) anstrebten.

Die Methode wird die Methode der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz PPSL genannt.

⁹ Bei dem Gerät, mit dem die von der Probe emittierten Photonen detektiert werden, handelt es sich um einen Sekundärelektronenvervielfacher. Der Untergrund, der bei den vorliegenden Messungen maßgeblich eine Rolle spielt, ist die glühelektrische Emission von Elektronen, die dem Richardsonschen Gesetz folgend bei Zimmertemperatur bei Erhöhung der Apparatemperatur um 1°C eine Verdoppelung der Untergrundergebnisse je Zeiteinheit nach sich ziehen kann. Eine solche Temperaturänderung ist in einem Labor innerhalb von Minuten beispielsweise durch veränderten Luftzug (Öffnen einer Tür, Schalten einer Klimaanlage, etc.) durchaus möglich. Weitere Beiträge können in der Veränderung des Radongehaltes der Luft liegen (beispielsweise durch Zuschalten einer Lüftung) und in der Veränderung des lokalen Strahlungsfeldes. Dies ist in Laboren, in denen mit weiteren Quellen ionisierender Strahlung gearbeitet wird, in denen diese möglicherweise bewegt werden und sich somit das dazugehörige Bremsstrahlungsfeld ändert, besonders von Bedeutung. Zudem können Fluktuationen der an der Messeinrichtung anliegenden Hochspannung den Messuntergrund beeinflussen.

1.4 Stand der Technik: Baumaterialien als Probenmaterial

Aus bereits erläuterten Gründen stützt sich die vorliegende Arbeit auf Baumaterialien in Form grobkeramischer Produkte (vgl. Kap. 1.2). Diese eignen sich nicht nur, weil sie kristalline Bestandteile wie Quarz und Feldspat besitzen, sondern im ganz Besonderen auch deshalb, weil sie einmal, zu einem bekannten Zeitpunkt, im Laufe des Brennprozesses einer hohen Temperatur ausgesetzt waren. Dadurch wird sämtliche, dem Material zuvor aufgeprägte Dosis gelöscht und somit für die Bestimmung der Altersdosis ein definierter Nullpunkt gesetzt. Als Baumaterial tritt Grobkeramik am häufigsten in Form von Mauer- und Dachziegeln auf. Die Bestandteile des Rohmaterials sind dabei verschiedenste Minerale in von Produkt zu Produkt unterschiedlichen Zusammensetzungen. Trotz der breiten Varietät der auftretenden Bestandteile findet sich generell Quarz, Feldspat und Kaolinite in grobkeramischen Produkten. Alle drei liegen in kristalliner Form vor und sind daher für die Messung mit TL- und PSL-Methoden geeignet.

Aber auch aus anderem Grund eignen sich Baumaterialien für die Dosisbestimmung besonders: bei der eingangs erwähnten Aufgabenstellung – zu klären, ob Strahlenexpositionen der Bevölkerung aufgetreten sind, und, wenn ja, mit welcher Dosis die Betroffenen belastet wurden – sind Baumaterialien „Dosimeter“, die in unmittelbarer Nähe der Betroffenen zu finden sind. Da Ziegel zudem ein in Deutschland überaus häufiges Baumaterial ist, kann auch in der Regel davon ausgegangen werden, dass in den erwähnten möglichen Anwendungsfällen Ziegel für dosimetrische Messungen zur Verfügung stehen.

Eine gewisse Problematik stellt allerdings noch die erwähnte breite Varietät an Mineralen im Ziegel dar. Diese lässt vermuten, dass für jede einzelne Messung die Optimierung der Messparameter erforderlich ist. Bei Betrachtung der Verteilung der Ziegeleien über Deutschland fällt aber eine deutliche räumliche Gliederung auf: Gegenden mit sehr hoher Ziegeleichte (das niederbayerische Tertiärhügelland, der Kraichgau, die westfälische Bucht, der Nordrand der nördlichen Mittelgebirge, die Börden und der nördliche Teil Sachsens) stehen Gegenden mit extrem geringer Ziegeleichte (das fränkische Stufenland, das rheinische Schiefergebirge, die Alt- und Jungmoränenlandschaften des Voralpenlandes und Norddeutschlands) gegenüber. Weiterhin ist Ziegel ein relativ preisgünstiges Material; ein weiter Transport sowohl von Rohmaterial wie vom fertigen Produkt lohnt sich nicht. Als Konsequenz ist die Dichte von Ziegeleien dort erhöht, wo das Rohmaterial bereits vor Ort ist. Als Rohmaterial können Auenlehme verwendet werden, vorzugsweise entlang von

Flussläufen zu finden, oder, aufgrund der viel größeren Häufigkeit ihres Auftretens erheblich öfter als Auenlehme, Löss. Diese sind Verwitterungsprodukte, die durch die Gletscher der Eiszeit entstanden sind und, vom Wind verfrachtet, an ihre heutigen Lagerstätten gebracht wurden. Speziell im Fall des niederbayerischen Tertiärhügellandes ist somit das Quellgebiet der Löss als Quellgebiet der alpinen Gletscher der Würmeiszeit gut bekannt und relativ eng begrenzt. Man könnte daher annehmen, dass Zusammensetzung und dosimetrische Eigenschaften der Minerale über eine derartig begrenzte Region relativ homogen sind, sodass die Entwicklung standardisierter Messverfahren möglich wird. Zudem kann aufgrund des niederen Preisniveaus von Ziegeln und der damit verbundenen Tatsache, dass Ziegel – sofern nicht notwendig – nicht weit transportiert werden, angenommen werden, dass in Regionen hoher Ziegeleichte vorzugsweise Ziegel aus lokal gewonnenen Rohstoffen verbaut werden. Solche Regionen sollen im Weiteren als „ziegeltechnisch geschlossen“ bezeichnet werden.

Was das aus diesem Material gebrannte grobkeramische Produkt betrifft, so ist, zumal für moderne Produkte, durch die stark vereinheitlichte Technik in der Ziegelherstellung keine Aufspaltung der dosimetrischen Eigenschaften der Ziegel nach den einzelnen Ziegeleinen einer „ziegeltechnisch geschlossenen“ Region zu erwarten.

1.5 Ziel der Arbeit

In dem generellen Bestreben, im Rahmen des Strahlenschutzes für die Allgemeinbevölkerung die Messmethoden der retrospektiven Dosimetrie zu verbessern, ergab sich für die vorliegende Arbeit aus dem gegebenen Messproblem und dem Stand der Technik das Ziel, ein standardisiertes Messverfahren zu erarbeiten, das nach Möglichkeit zu einer verbesserten, d.h. niedrigen Nachweisgrenze führt. Der Stand der Technik ließ die Anwendung der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz PPSL als die – im Speziellen für die Standardisierung – geeignete Messmethode und grobkeramische Produkte für die geeigneten Probenmaterialien erscheinen.

Aus diesem Ansatz ergeben sich verschiedene Teilziele:

1. Ein zentraler Aspekt der PSL und mithin ebenfalls der PPSL ist die Frage nach dem „richtigen Stimulationslicht“. Dies bedeutet, dass eine Probe nur bei Stimulation mit Photonen bestimmter, diskreter Energien Photonen emittiert, d.h. die gewünschte

dosisabhängige Information preisgibt. Diese Energien hängen von den Mineralen ab, die stimuliert werden sollen. In einem ersten Teilziel ist deshalb die geeignete Stimulationsenergie festzustellen.

2. In einem weiteren Teilziel sind die physikalischen Eigenschaften der Messproben in Erfahrung zu bringen. Ihre Kenntnis gibt Auskunft über die geeigneten Messparameter.
3. Nach Optimierung der Messparameter ist schließlich die Nachweisgrenze zu bestimmen. Dadurch ergibt sich die Qualität der erarbeiteten Messmethode.
4. In einem letzten Schritt ist die Lebensdauer des Messsignals zu ermitteln. Sie gibt schließlich Auskunft über die Anwendbarkeit und Grenzen der erarbeiteten Messmethode.

Da die generelle Zusammensetzung grobkeramischer Produkte bekannt ist und bereits eine Fülle von Arbeiten zu prinzipiellen Eigenschaften einzelner Minerale vorliegen, kann die Frage nach dem ersten Teilziel aus der Literatur heraus angegangen werden. Die Voraussetzungen hierfür und auch die notwendigen theoretischen Grundlagen für die Messungen und Experimente der vorliegenden Arbeit werden in Kap. 2 erläutert.

Das Kap. 3 widmet sich den grobkeramischen Baustoffen und gibt dem Leser den notwendigen Aufschluss über Zusammensetzung, Rohstoffarten und deren Herkunft. Daraus ergibt sich das Bild heutiger Verwendung und Verbreitung – Voraussetzung für die Möglichkeit, eine standardisierte Messmethode zu entwickeln.

Im Kap. 4 wird zunächst das Messprogramm dargelegt, so, wie es sich zwangsläufig aus den physikalischen Gegebenheiten, beschrieben in Kap. 2, und den Voraussetzungen durch die Wahl von grobkeramischen Produkten als Probenmaterial, beschrieben in Kap. 3, ergibt. Im Weiteren werden die einzelnen Messproben, sowie technische Ausstattung, Probenaufbereitung und die im Rahmen der Experimente notwendigen Bestrahlungen beschrieben.

Inhalt von Kap. 5 sind die Experimente und ihre Ergebnisse. Dabei teilt sich das Kapitel vier Teilkapitel: Die Kap. 5.1 und 5.2 widmen sich dem zweiten Teilziel, dem Eruiieren und Optimieren der Messparameter; in Kap. 5.3 wird der Nachweisgrenze nachgegangen (drittes Teilziel); und in Kap. 5.4 wird die Lebensdauer des Messsignals überprüft (viertes Teilziel).

Im Kap. 6 schließlich wird ein genereller Überblick zu Unsicherheit und Nachweisgrenze der erarbeiteten Messmethode gegeben.

Um dem Ziel, ein standardisiertes Messverfahren zu entwickeln, nachzukommen, sind sämtliche Messungen für einen repräsentativen Satz Proben aus einem ziegeltechnisch geschlossenen Gebiet durchzuführen und die Ergebnisse der Messungen zu vergleichen. Für die vorliegende Arbeit wurde das Niederbayerische Tertiärhügelland als das zu untersuchende ziegeltechnisch geschlossene Gebiet ausgewählt.

Durch Messung von Vergleichsziegeln aus anderen Regionen Deutschlands – Regionen insbesondere, deren quartärgeologische Vorbedingungen zu denen des Niederbayerischen Tertiärhügellandes verschieden sind – wird zudem der Frage nachgegangen, inwieweit die Ergebnisse für moderne Ziegel generell zutreffen. Hierbei ist allerdings nur ein Indiz zu erwarten, ob eine Übertragung der gewonnenen Ergebnisse auf moderne Ziegel allgemein möglich ist oder nicht. Dies müsste dann in einer weiteren Untersuchung geklärt werden und ist nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

2. Grundlagen der Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz

2.1 Voraussetzung: Das Kristallgitter

Das Bändermodell

Von einem Kristall spricht man, wenn eine „dreidimensionale periodische Anordnung von einzelnen Atomen oder Atomgruppen“ gegeben ist [KOPITZKI, 1989, S.12]. Da die Bindungen, die einen derartigen Festkörper zusammenhalten, in aller Regel Ionen- oder kovalente Bindungen, bei Metallen metallische Bindungen oder in selteneren weiteren Fällen auch Van-der-Waals-Bindungen sind [KOPITZKI, 1989, S.34ff], handelt es sich bei den den Festkörper zusammenhaltenden Kräften in jedem Fall um elektromagnetische Kräfte. Das regelmäßige Muster, das einem Kristall zugrunde liegt, spiegelt sich somit - mikroskopisch, im Inneren des Kristalls - im Verlauf der potentiellen Energie der Kristallelektronen wieder. Bloch zeigte erstmals durch Anwendung der Schrödinger-Gleichung auf ein gitterperiodisches Potential, dass in einem Kristall für die Elektronen des Kristalls nur bestimmte Energieintervalle zugelassen sind [BLOCH, 1928]. Man spricht bei den zugelassenen Energieintervallen, also bei den Energien, die ein Elektron im Kristall besitzen kann, von Energiebändern - von den übrigen, „verbotenen“ Energieintervallen von Energie- oder Bandlücken.

Jedes Energieband hat eine bestimmte, vom Kristall und der Art der Atome, die ihn aufbauen, abhängige Aufnahmekapazität an Elektronen. Die Elektronen eines Kristalls füllen die Bänder beginnend mit dem energieärmsten Band auf. Das energiereichste Band, das bei der Temperatur $T = 0 \text{ K}$ mit Elektronen vollbesetzt ist, heißt Valenzband, das nächst höhere Leitungsband. Im Leitungsband sind die Elektronen aufgrund von noch freien Energiezuständen frei über den Kristall beweglich. Im Valenzband sind sie lokal gebunden. Wenn nun das Leitungsband völlig leer ist, handelt es sich um einen Isolator - elektronischer Ladungstransport ist nicht möglich.

Fehlstellen, Farbzentren, Fallen

Bei einem absolut regelmäßigen Gitter handelt es sich nun aber um ein reines Denkmmodell. Selbst mit erheblichem technischen Aufwand künstlich gezogene Einkristalle weisen keine absolute Regelmäßigkeit auf. Um so weniger tritt sie in der Natur auf. Es sind verschiedene Fehlordnungen denkbar: Ein Beispiel sind Fremdatome in einem Gitter. Ein anderes Beispiel stellen sog. Farbzentren¹⁰ dar. Es handelt sich bei diesen um Elektronen, die in einem Ionenkristall allein ein negatives (in der Regel ein Halogen-) Ion ersetzen.

Allen Fehlordnungen ist gemeinsam, dass sie lokal das Gitter und somit auch die Struktur der Energiebänder stören. Lokal entstehen damit Energieniveaus, die von der Bandstruktur des gesamten Kristalls unabhängig sind. Manche dieser Niveaus liegen zwischen Leitungs- und Valenzband.

Anmerkung: Darstellung des Bändermodells

In der Festkörperphysik werden die Energiebänder üblicherweise als Energie E über dem Wellenvektor \vec{k} dargestellt. Dabei ist E die Energie eines Elektrons mit dem Wellenvektor \vec{k} . Dieser ist ausschließlich von der de-Broglie-Wellenlänge λ des betreffenden Elektrons abhängig; seine Richtung gibt die des Impulses des Elektrons wieder (Abb. 1).

¹⁰ Der Name „Farbzentrum“ für eine Art von Kristallfehlern wurde im Rahmen mineralogischer Untersuchungen eingeführt, in Folge derer sich zeigte, dass diese für die Farben von Mineralen und Edelsteinen verantwortlich sind.

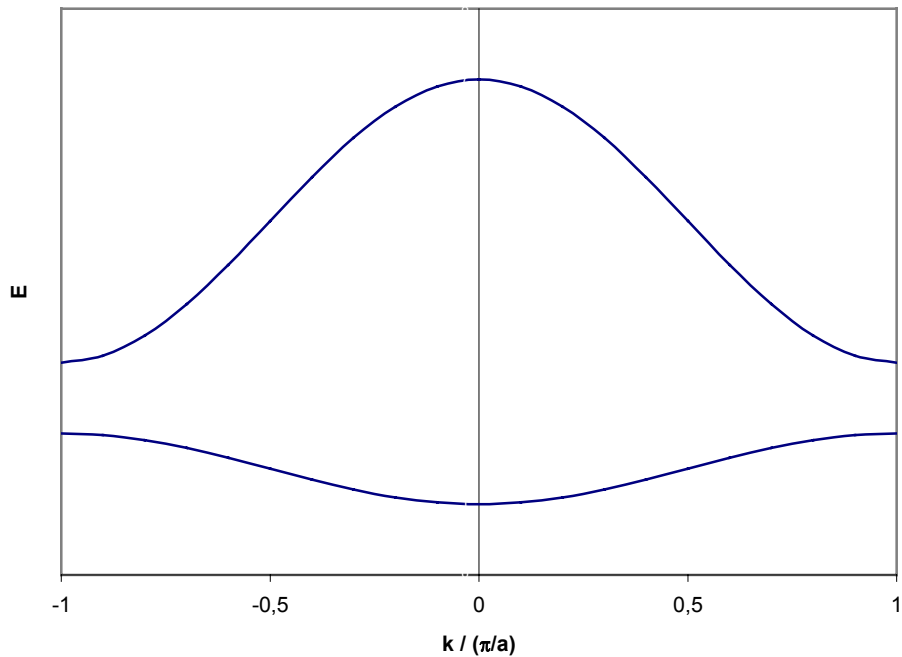


Abb. 1: Bändermodell: Darstellung als Funktion der erlaubten Energien über dem Wellenvektor \vec{k} (a : Gitterkonstante)

In der Lumineszenz-Literatur hat sich die Darstellung der Energiebänder als Energie E über dem Ortsvektor \vec{r} eingebürgert. E sind dabei die erlaubten Energiezustände an einem bestimmten Punkt, der durch den Ortsvektor \vec{r} charakterisiert ist.

2.2 Der Kristall als Dosimeter: Speicherung der Dosisinformation

Bei Exposition von Materie gegenüber ionisierender Strahlung - d.i. α -Strahlung, β -Strahlung, γ -Strahlung und Röntgen-Strahlung - sind folgende Wechselwirkungsprozesse möglich [BRÖCKER, 1989, S.124ff]:

- α -Strahlung:

Im Fall von α -Strahlung werden die α -Teilchen vor allem über inelastische Zusammenstöße an Elektronen gebremst und übertragen ihre Energie somit auf diese. Die Elektronen absorbieren die Energie entweder durch eine Anhebung auf ein höheres

Energieniveau oder sie werden von dem Atomrumpf getrennt, wandern selbst durch den Kristall, werden dann - vorzugsweise über inelastische Streuung an anderen Atomelektronen - gebremst und übertragen ihre Energie auf diese. Die Energie eines einzelnen α -Teilchens überträgt sich somit lawinenartig auf Sekundärteilchen. Seine Gesamtenergie wird aber letztlich über eine Vielzahl von Prozessen in dem Kristall deponiert. Ein Teil dieser Energie führt dabei zur Anhebung von Elektronen vom Valenz - in das Leitungsband.

- β -Strahlung:

Beim β -Zerfall können zwei Arten von Teilchen frei werden: β^- -Teichen, die ihrem Wesen nach identisch mit Elektronen sind, und β^+ -Teichen, die ihrem Wesen nach identisch mit Positronen, den Antiteilchen der Elektronen, sind.

Freie Positronen in Materie reagieren meist rasch mit Elektronen der Materie, wobei sich beide Teilchen gegenseitig vernichten und die dabei freiwerdende Energie von 1022keV, die sog. Vernichtungsenergie, als elektromagnetische Welle, vergleichbar dem γ -Quant, im Kristall bleibt.

Elektronen hingegen werden wie α -Teilchen im Kristall gebremst, vorzugsweise über inelastische Streuung an Atomelektronen, und übertragen dabei ihre Energie auf den Kristall. Wie auch bei der α -Strahlung führt ein Teil der so in den Kristall eingebrachten Energie zur Anhebung von Elektronen vom Valenz - in das Leitungsband.

- γ -Strahlung:

Da γ -Strahlung - im Gegensatz zu α -Strahlung und β -Strahlung - nicht im gleichen Maß Teilchencharakter aufweist, sondern sich auch durch Charakteristika elektromagnetischer Strahlung auszeichnet, sind die Primäreffekte bei Wechselwirkung mit Materie andere; bei ihnen sind zu nennen:

- elastische Streuung
- inelastische Streuung
- der Compton-Effekt
- der Photoeffekt

und

- der Paarbildungseffekt.

All diesen Effekten ist gemeinsam, dass sie entweder zur Anhebung von Elektronen in höhere Energieniveaus führen können, oder dass aufgrund ihres Eintretens frei im Kristall bewegliche Elektronen entstehen, die als Sekundärteilchen wie im Fall der α - und β -Strahlung im Kristall gebremst werden, so dort ihre Energie deponieren und somit zu einem Teil zur Anhebung von Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband führen.

Die Wechselwirkung jeder der genannten Strahlungsarten mit Materie bewirkt, dass dieser Energie übertragen, bzw. von dieser absorbiert wird. In einem Kristall kann es die absorbierte Energiemenge den Elektronen des Kristalls ermöglichen, die Energielücke zwischen Valenz- und Leitungsband zu überspringen. Im Leitungsband sind sie nun frei über den gesamten Kristall beweglich; sie sind *delokalisiert*. In dem Streben des Gesamtsystems nach dem energieärmsten Zustand fallen sie aber in Kürze auf energieärmere Zustände zurück. Bei diesen Reaktionen kann es sich entweder um Rekombinationen mit freien Plätzen im Valenzband handeln oder um „Einfang“-Reaktionen auf Zwischenbandniveaus, für die sich daher der Begriff „Falle“ eingebürgert hat. In beiden Fällen sind die Elektronen nun wieder *lokalisiert*, d.h. auf konkreten Plätzen im Kristall, von denen sie sich nur unter Aufnahme von Energie wegbewegen können.

Nach Exposition des Kristalls gegenüber Strahlung stellt somit die Zahl der in Fallen eingefangenen Elektronen eine Information über die Energie dar, die vom Kristall absorbiert wurde. Bei dieser vom Kristall absorbierten Energie handelt es sich um die Dosis, die zu ermitteln das Ziel dosimetrischer Messungen ist.

Wie in Kap. 2.1 erläutert wurde, ist die Voraussetzung für Fallen das Vorhandensein von Kristallfehlern. Dabei treten, für jeden Kristall typisch, bestimmte Kristallfehler bevorzugt auf (z.B. das Vorhandensein bestimmter Fremdatome an bestimmten Gitterplätzen). Es entstehen somit in jedem Kristall „Fallentypen“, die auf einem in *diesem* Kristall häufig auftretenden Kristallfehler basieren, und die sich durch einen charakteristischen energetischen Abstand zum Leitungsband auszeichnen. Wäre die Verweildauer der Elektronen in den Fallen unendlich, so wäre der Besetzungsgrad jeder einzelner dieser Fallentypen sowie der der Summe aller zusammen ein Maß für die vom Kristall absorbierten Energie, d.h. für die Dosis. Da der Kristall aber sowohl während der Exposition als auch im Weiteren einer Temperatur > 0 K ausgesetzt ist, ist dem in einer Falle gefangenen Elektron stets die Möglichkeit thermischer Energieaufnahme gegeben.

Dies bedeutet, dass die Verweildauer¹¹ des Elektrons in der Falle endlich ist. Sie hängt im Wesentlichen vom energetischen Abstand der Falle zum Leitungsband ab und ist um so kürzer, je kürzer dieser energetische Abstand ist. Dies bedeutet, dass nur die Besetzungszahlen von Fallen, in denen die Verweildauer der Elektronen hinreichend groß ist (d.h. viel größer als die Zeitdauer, die seit dem zu untersuchenden Ereignis verstrichen ist), als Maß für die Dosis zur Verfügung stehen. Die Besetzungszahlen dieser Fallentypen stellen somit die dosisabhängige Größe dar; sie gilt es zu ermitteln.

2.3 Messung des dosisabhängigen Signals

Zum Messen des dosisabhängigen Signals wurden im Laufe der Zeit verschiedene Methoden entwickelt. Die Anwendbarkeit der Methoden hängt von verschiedenen Parametern wie Probenmaterial und Dosisbereich ab (vgl. Anhang A1). Für Grobkeramik, die in dieser Arbeit im Besonderen als Probenmaterial betrachtet werden soll, stehen als Verfahren die Thermolumineszenz TL und die Photonen-stimulierte Lumineszenz PSL zur Verfügung. In beiden Fällen werden die in den Fallen befindlichen Elektronen dadurch „sichtbar“ gemacht, dass man sie über – je nach Art der Methode verschiedenen physikalischen Mechanismen – von den Fallen in das Leitungsband hebt, von wo ein Teil von ihnen unter Aussendung eines Photons mit einem energieärmeren Zustand rekombiniert. Meist ist das nicht ein Zustand, der sich unmittelbar im Valenzband befindet, sondern ebenfalls auf einem Zwischenbandniveau, einem sog. „Rekombinationszentrum“. Die Zahl der bei diesem Vorgang emittierten Photonen ist proportional der Zahl der Elektronen, die sich zuvor auf Fallen befunden hatten, und somit ein Maß für die zu bestimmende Dosis.

¹¹ In der Lumineszenz-Literatur hat sich der Begriff „Lebensdauer der Falle“ eingebürgert, obwohl er physikalisch nicht ganz korrekt ist: a) kann die Falle erheblich langlebiger sein als die Verweildauer eines Elektrons in ihr. b) ist in aller Regel der Begriff Lebensdauer mit dem Begriff Halbwertszeit verknüpft, was eine exponentielle Abnahme der Zahl der Elektronen in einem Fallentyp voraussetzt; dies ist jedoch nur gegeben, wenn sich die Befreiung aus der Falle rein thermisch vollzieht; es sind aber noch weitere, thermisch lediglich unterstützte Mechanismen möglich, aufgrund derer die Abnahme der Zahl der Elektronen in einem Fallentyp nicht durch einen exponentiellen Zusammenhang zu beschreiben ist (siehe Kap. 2.3.2).

2.3.1 Die Methode der Thermolumineszenz (TL)

Wie oben bereits beschrieben, wird die Verweildauer der Elektronen in den Fallen durch Aufnahme thermischer Energie bestimmt. Je höher die zur Verfügung stehende thermische Energie ist - je höher also die Kristalltemperatur liegt -, desto höher ist für ein in einer Falle befindliches Elektron die Wahrscheinlichkeit, ins Leitungsband angehoben zu werden. Genau dieser Effekt wird bei Verwendung der Thermolumineszenz-Methode ausgenutzt:

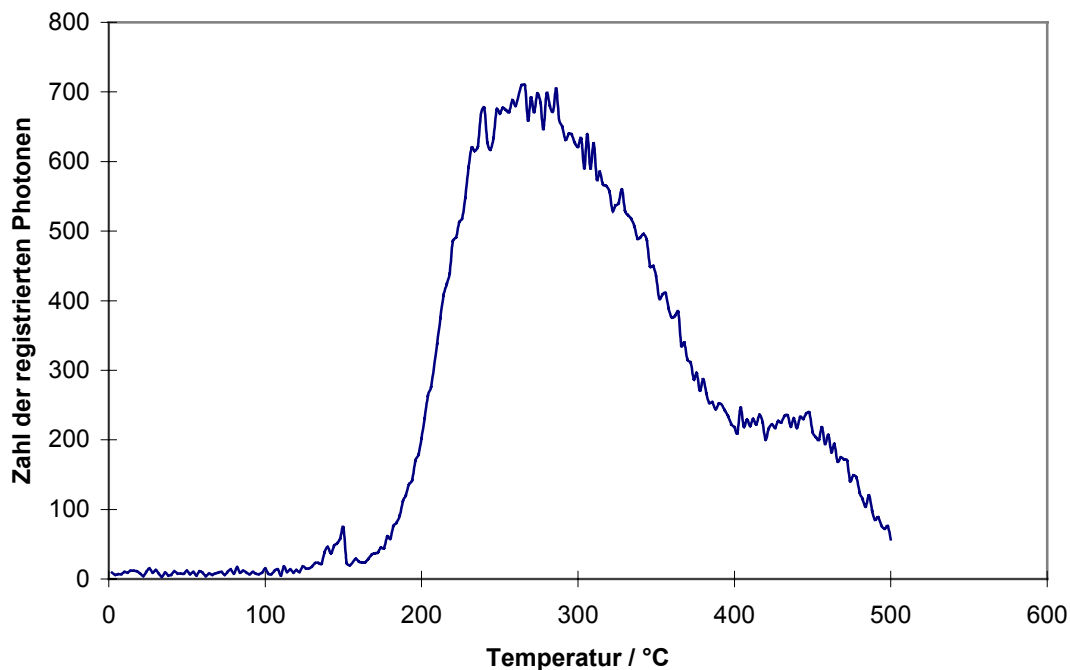


Abb. 2: Beispiel einer Glowkurve

Man heizt den zu untersuchenden Kristall mit in aller Regel konstanter, in jedem Fall aber definierter Heizrate bis zu einer bestimmten Maximaltemperatur T_{\max} . Bei Erreichen bestimmter Temperaturmarken T_1, T_2, \dots liegt im Kristall ausreichend thermische Energie vor, um die Mehrzahl der Elektronen aus einem bestimmten Fallentyp in das Leitungsband zu heben, von wo aus sie innerhalb erheblich kürzerer Zeit als bis zum Erreichen der nächsten Temperaturmarke rekombinieren. Wenn die Zahl der dadurch erzeugten Photonen instantan während des Heizvorgangs registriert wird, ergibt sich eine für Probenmaterial, Dosis, Zeitdauer seit Exposition und verschiedener weiterer Parameter abhängige Kurve der registrierten Photonen über der jeweiligen Kristalltemperatur. Diese Kurve ist die

Grundlage weiterer Auswertung und heisst - auch in der deutschsprachigen Literatur - „Glowkurve“ (Abb. 2). Die Maxima der Glowkurve entsprechen bestimmten Fallentypen im Kristall.

Zusätzlich zur Anregung von Elektronen aus den Fallen direkt ins Leitungsband sind noch weitere Rekombinationspfade möglich:

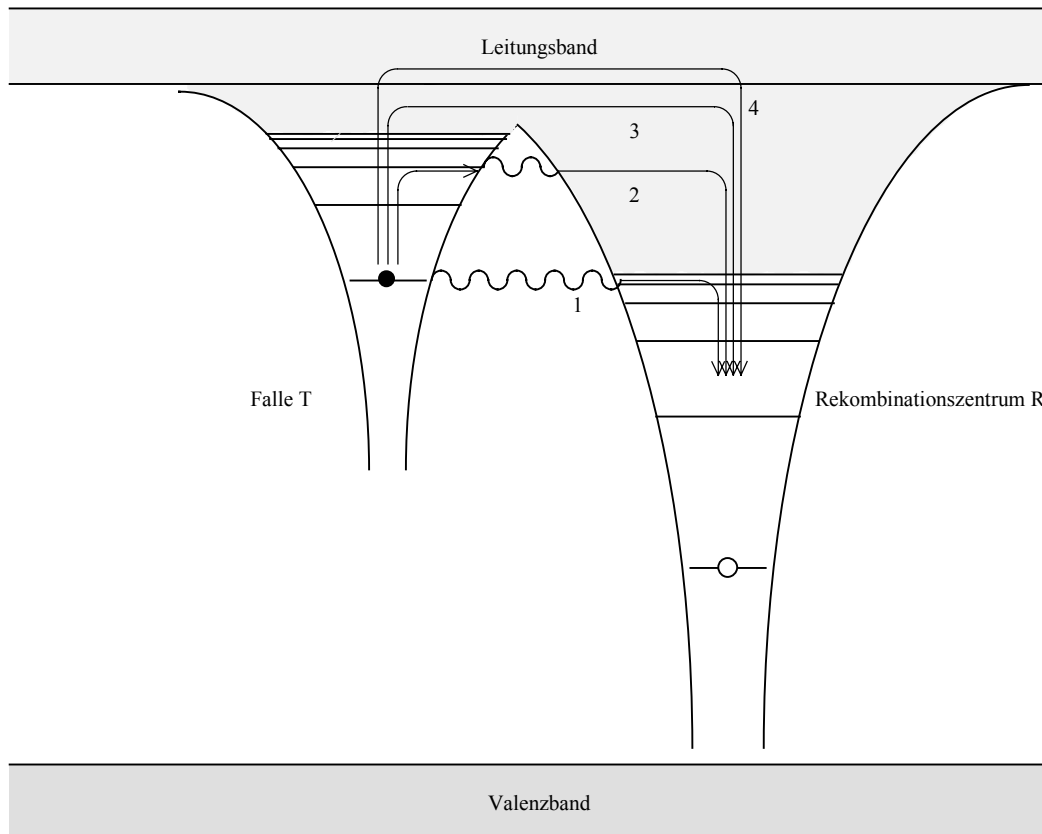


Abb. 3: Rekombinationswege von in Fallen gefangenen Elektronen

Der Rekombinationsweg (1) ist immer möglich; er setzt die - nur quantenmechanisch zu erklärende - Erscheinung des Tunnelns voraus und ist u.a. verantwortlich für den natürlichen Informationsverlust, das „Fading“. Die Wege (2), (3) und (4) werden durch die thermische Anregung induziert. Beim Weg (2) wird das Elektron auf ein höheres Niveau versetzt, auf dem es einen geringeren Potentialwall zum nächsten Rekombinationszentrum vorfindet, so dass die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des Tunneleffekts erhöht wird. Bei Weg (3) und (4) wird das Elektron in ein Energieniveau angehoben, in dem es sich frei

bewegen kann. Bei all diesen Rekombinationsmöglichkeiten setzen Weg (1), (2) und (3) die örtliche Nähe von Falle und Rekombinationszentrum voraus.

Rekombinationen über die Wege (2), (3) und (4) führen zur Aussendung eines Photons, das der Messung dient. Seine Energie ΔE ist bestimmt durch die Energiedifferenz des Leitungsbandes zu der Energie des Rekombinationszentrums. Sie liegt für natürliche Minerale wie beispielsweise Feldspat, der im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit von vorrangiger Bedeutung sein wird, typischerweise bei 2eV bis 3eV, also im Bereich des sichtbaren Lichtes.

Die Wärmeenergie, die ein Kristall bei gegebener Temperatur besitzt oder die man dem Kristall durch Aufheizen zufügt, manifestiert sich in Gitterschwingungen, deren Energie gequantelt vorliegt [KITTEL, 1991]. Diese Gitterschwingungen diskreter Energie heißen Phononen [LENK, 1989]. Phononen können in der quantentheoretischen Betrachtungsweise auch als Quasiteilchen verstanden werden. In der damit verbundenen Quantenstatistik müssen sie aufgrund ihrer Ununterscheidbarkeit als Bosonen verstanden werden und unterliegen somit der Bose-Einstein-Statistik. Die Verteilung der Energien der Phononen ergibt sich somit entsprechend der Planckschen Strahlungsformel [KALVIUS *et al.*, 1985]:

$$S(E) = \frac{E^3}{4\pi^3 \hbar^2 c^2} \left(\exp\left(\frac{E}{kT}\right) - 1 \right)^{-1} \quad [1]$$

Die Verteilung der Phononen bei Raumtemperatur, bzw. bei 500°C über die verschiedenen Energien ist in Abb. 4 dargestellt. Es zeigt sich, dass in beiden Fällen die Mehrzahl der Phononen Energien weit unter 1eV besitzen und damit nicht für eine Anregung von Elektronen aus Fallen in das Leitungsband zur Verfügung stehen. Gleichwohl existiert aber in beiden Fällen ein hochenergetischer Anteil mit Energien über 1eV, der eine Anregung möglich macht. Bei Raumtemperatur beträgt der Anteil der Phononen mit Energien größer 2eV ca. $3,6 \cdot 10^{-30}$. Dies bedeutet, dass eine Anregung aus Fallen mit einem energetischen Abstand von 2eV und mehr zum Leitungsband nicht sehr wahrscheinlich ist. Elektronen ruhen innerhalb der für dosimetrische Zwecke notwendigen Zeiträume stabil in diesen Fallen. Bei einer Temperatur von 500°C hingegen liegt der Anteil der Phononen mit Energien größer 2eV bei ca. $4,4 \cdot 10^{-10}$. Dieser Anteil bereits ist bei weitem ausreichend, sämtliche Elektronen aus Fallen mit einem energetischen Abstand von etwa 2eV zum Leitungsband anzuregen. Auch bei Raumtemperatur ist eine Anregung von Elektronen aus Fallen mit einem energetischen Abstand von etwa 2eV zum Leitungsband möglich. Eine Minderung des dosisabhängigen Signals ist aber dabei nur in Zeiträumen von etlichen 10^4

Jahren zu erwarten und daher für dosimetrische Zwecke nicht von Belang.

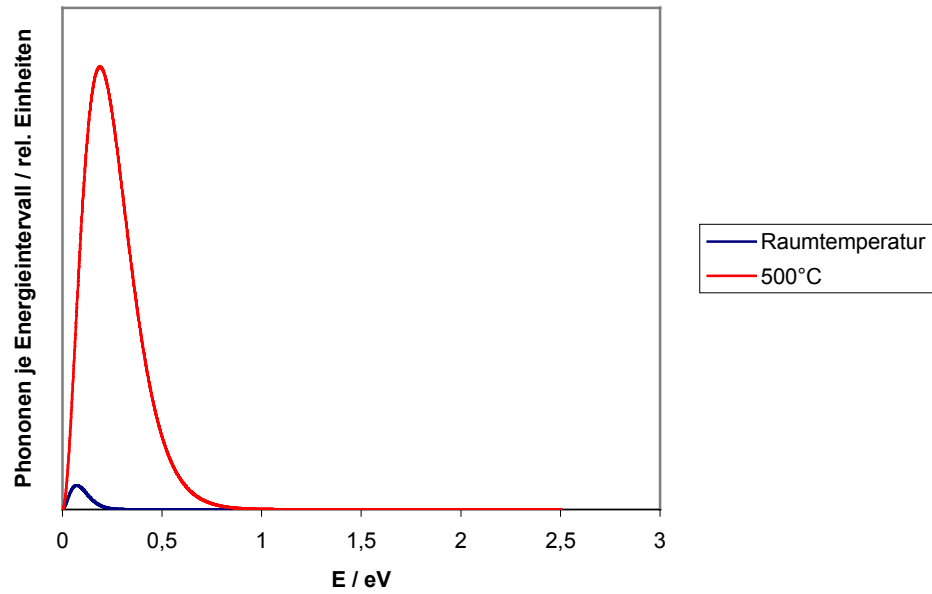


Abb. 4: Anzahl der in einem Kristall vorhandenen Phononen je Energieintervall nach dem Planckschen Strahlungsgesetz

Abb. 5 stellt die Vorgänge während Bestrahlung und Messung vereinfacht dar:

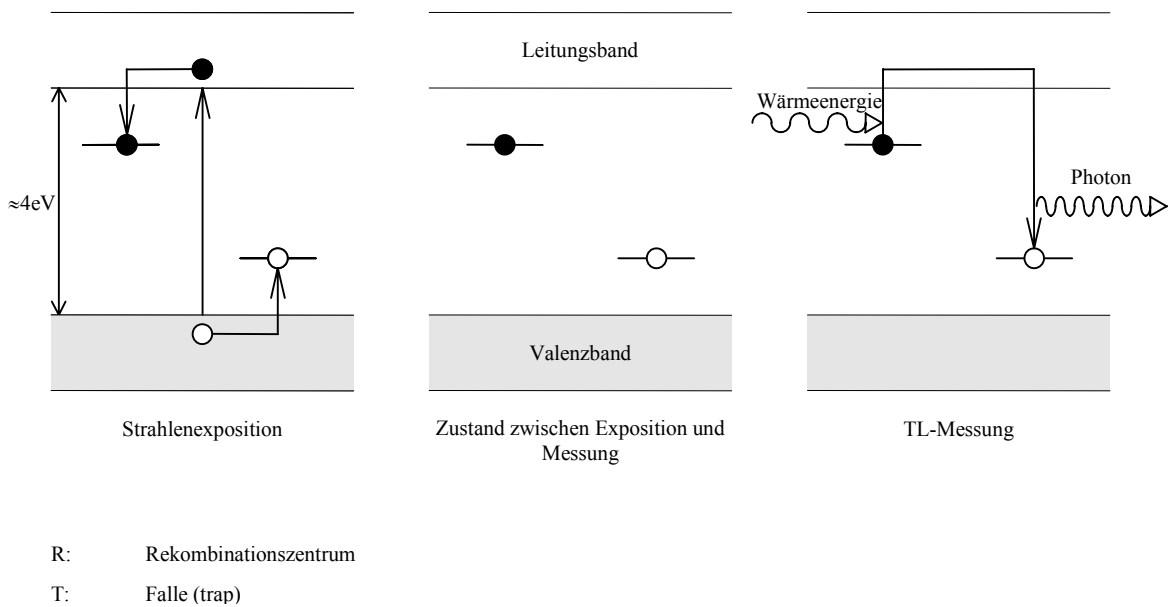


Abb. 5: Darstellung der Vorgänge im Bändermodell nach [HÜBNER, 1996]

Einschub: Theoretische Überlegungen zu Thermolumineszenz

Die theoretische Beschreibung der Glowkurve eines realen Kristalls ist aufgrund des Auftretens verschiedener Prozesse, die parallel und z.T. konkurrierend ablaufen, nur in wenigen Fällen möglich. Dennoch kann zumindest für einzelne Maxima der Glowkurve eine theoretische Vorhersage getroffen werden. Eine detaillierte Herleitung hierzu findet sich bei [MCKEEVER, 1985], [MCKEEVER, 1997] und [CHEN & MCKEEVER, 1997]. Dazu geht man von dem energetischen Ungleichgewicht aus, das durch die Erhitzung des Kristalls während des Messvorgangs ausgelöst wird. Das Gleichgewicht, dem das Gesamtsystem zustrebt, wird durch Anregung sämtlicher Elektronen aus dem zu untersuchenden Fallentyp und deren Rekombination erreicht. Zur Berechnung des Übergangs des Gesamtsystems ins Gleichgewicht werden folgende Näherungsannahmen getroffen:

- Keine strahlenden Übergänge vom Leitungsband in Fallen,
- Keine direkten Übergänge ins Valenzband,
- Die Wahrscheinlichkeit einer Reaktion eines Elektrons aus dem Leitungsband mit einer Falle oder einem Rekombinationszentrum hängt lediglich von Art und Dichte der Fallen, bzw. der Rekombinationszentren ab. Dies gilt auch für eben ins Leitungsband angeregte Elektronen – die Rekombination mit der Falle, aus der ein einzelnes Elektron ins Leitungsband gehoben wurde, ist gleich wahrscheinlich wie die mit einer anderen derselben Art.

Wenn n die Anzahl der in Fallen gefangenen Elektronen und m die Anzahl der in Rekombinationszentren gefangenen Lochzustände ist, lassen sich die Übergänge ins Gleichgewicht durch die zeitlichen Verläufe der Funktionen $\frac{dn}{dt}$ und $\frac{dm}{dt}$ beschreiben; bei Erreichen des Gleichgewichts nehmen sie den Wert Null an. Die Veränderung der Anzahl der in Fallen gefangenen Elektronen n ist durch den Zuwachs von n durch (Wieder-)Einfang von Elektronen aus dem Leitungsband, sowie den Verlust von Elektronen durch Anregung ins Leitungsband begründet (Gl. [2]). Die Veränderung der Anzahl der Elektronen im Leitungsband n_L ist durch den Zuwachs durch Anregung von Elektronen aus Fallen und den Verlust durch Wiedereinfang von Elektronen in Fallen sowie den Verlust

durch Einfang von Elektronen an Rekombinationszentren zu erklären (Gl. [3]). Der Hintergrund für eine Veränderung von m liegt allein in dem Einfang von Elektronen an Rekombinationszentren (Gl. [4]). Die Gleichungen, die den Übergang ins Gleichgewicht für nur eine Falle und ein Rekombinationszentrum beschreiben sind somit:

$$\frac{dn}{dt} = n_i(N - n)A_n - ns \exp\left\{-\frac{E_T}{kT}\right\}, \quad [2]$$

$$\frac{dn_i}{dt} = ns \exp\left\{-\frac{E_T}{kT}\right\} - n_i(N - n)A_n - n_i mA_{mn} \quad [3]$$

und

$$\frac{dm}{dt} = -n_i mA_{mn} \quad [4]$$

wobei:

- n_L : Anzahl der negativen Ladungen (Elektronen) im Leitungsband
- n_V : Anzahl der positiven Ladungen (sog. Lochzustände) im Valenzband
- n : Anzahl der in Fallen gefangenen Elektronen
- m : Anzahl der in Rekombinationszentren gefangenen Lochzustände
- N : Gesamtanzahl der Fallen
- E_T : Falltiefe (energetischer Abstand des Fallenniveaus zum Leitungsband)
- s : „Klopfrequenz“ - Wahrscheinlichkeit, mit der ein in einem Fallenzustand befindliches Elektron ins Leitungsband gehoben wird
- A_n : Wahrscheinlichkeit, mit der ein im Leitungsband befindliches Elektron in eine Fall zurückfällt
- A_{mn} : Wahrscheinlichkeit, mit der ein im Leitungsband befindliches Elektron an einem Rekombinationszentrum mit einem Lochzustand reagiert und dabei ein Photon aussendet

Aus Gl. [2] und [3] ist auf Anhieb zu sehen, dass

$$\frac{dn_L}{dt} = \frac{dm}{dt} - \frac{dn}{dt} \quad [5]$$

Das TL-Signal I_{TL} ist proportional der Zahl der emittierten Photonen; daher gilt:

$$I_{TL} \propto -\frac{dm}{dt} \quad [6]$$

Zur weiteren Berechnung wird die Annahme getroffen, dass in Zeiträumen, die gegenüber der Gesamtzeitspanne, die zum Erreichen des Gleichgewichtszustandes notwendig ist, sehr kurz sind, die Änderung der Zahl der Elektronen im Leitungsband sehr klein gegenüber der Änderung der Zahl der Elektronen in den Fallen, bzw. der Änderung der Zahl der Lochzustände an den Rekombinationszentren ist:

$$\left| \frac{dn_L}{dt} \right| \ll \left| \frac{dm}{dt} \right|, \left| \frac{dn}{dt} \right| \quad [7]$$

Der Zustand, der durch diese Annahme beschrieben wird, heißt „Quasigleichgewicht“; die Annahme ist gerechtfertigt, da die Zahl der Elektronen in den Fallen wie auch die Zahl der Lochzustände an den Rekombinationszentren der strengen Tendenz unterliegt, abzunehmen, während die ebenfalls abnehmende Tendenz der Zahl der Elektronen im Leitungsband durch die konkurrierenden Prozesse der Anregung von Elektronen aus den Fallen und der Rekombination in die Rekombinationszentren stark abgebremst wird. Unter der Annahme des Quasigleichgewichts lässt sich Gl. [6] umschreiben zu

$$I_{TL} \propto \frac{ns \exp\{-E_T/kT\}mA_{mn}}{[(N-n)A_n + mA_{mn}]} \quad [8]$$

$$\Rightarrow I_{TL} \propto ns \exp\left\{-\frac{E_T}{kT}\right\} \left[1 - \frac{(N-n)A_n}{(N-n)A_n + mA_{mn}} \right] \quad [9]$$

Diese Gleichung wird als „General One-Trap“-Gleichung (GOT) bezeichnet [LEVY, 1985]. Da N , n und m von der Zeit t abhängen, lässt sich aus der GOT-Gleichung immer noch nicht die Glowkurve errechnen. Um dies zu erreichen, nimmt man entweder an, dass man näherungsweise den Wiedereinfang von Elektronen in Fallen vernachlässigen kann [RANDALL & WILKINS, 1945a,b], oder dass gerade dieser Prozess den Übergang ins Gleichgewicht dominiert [GARLICK & GIBSON, 1948]. Dies führt zu den kinetischen Gleichungen 1. bzw. 2. Ordnung.

Elektronen-Kinetik 1. Ordnung:

Wenn man nun einen vernachlässigbaren Wiedereinfang annimmt, d.h. unter der Annahme $m A_{mn} \gg (N-n) A_n$, vereinfacht sich die GOT-Gleichung zu

$$I_{TL} \propto n_0 s \exp\left\{-\frac{E_T}{kT}\right\} \exp\left\{-\left(\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left\{-\frac{E_T}{k\Theta}\right\} d\Theta\right\}, \quad [10]$$

wobei

- n_0 : der Wert von n zum Zeitpunkt $t=0$,
- β : die Heizrate,
- T_0 : die Ausgangstemperatur und
- Θ : der Laufparameter der Temperatur ist.

Zwar ist das Integral in der Gleichung nicht analytisch, dennoch aber sehr einfach numerisch zu lösen.

Elektronen-Kinetik 2. Ordnung:

Im Fall der Annahme, dass der Wiedereinfang von Elektronen aus dem Leitungsband in die Fallen den Gesamtprozess dominiert, dass also $m A_{mn} \ll (N-n) A_n$, vereinfacht sich die GOT-Gleichung zu

$$I_{TL} \propto n_0^2 \frac{s}{N} \exp\left\{-\frac{E_T}{kT}\right\} \left[1 + \left(\frac{n_0 s}{\beta N}\right) \int_{T_0}^T \exp\left\{-\frac{E_T}{k\Theta}\right\} d\Theta\right]^{-2} \quad [11]$$

Der Begriff 1. bzw. 2. Ordnung bezieht sich auf den reziproken Wert der Potenz, mit der die eckige Klammer in die Rechnung miteingeht.

Es hat sich in vielen Fällen gezeigt, dass sich trotz der Annahmen und Näherungen der Verlauf eines Maximums durch das eine oder andere der beiden oben dargestellten Modelle gut beschreiben lässt. Dies gilt aber nur, wenn dieses Maximum in der Glowkurve eindeutig auszumachen ist und sich nicht mit einem anderen überdeckt.

2.3.2 Die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL)

Im Gegensatz zur Methode der Thermolumineszenz wird im Fall der Photonen-stimulierten Lumineszenz der Kristall nicht mit Wärme, sondern mit Photonen definierter Energie stimuliert. Die physikalischen Abläufe bei der Messung sind denen analog bei der Thermolumineszenz, nur dass die Anhebung von Elektronen aus den Fallen hier durch Beleuchtung des Probenmaterials mit Licht hervorgerufen wird. Dabei werden Photonen der Energie von einigen eV im Kristall absorbiert. Damit ist Licht des sichtbaren, bzw. des nahen Infrarotbereiches verbunden. Die mittlere Eindringtiefe der Photonen in den Kristall hängt zwar vom jeweiligen Einzelfall ab, sie liegt aber typischerweise im Bereich einiger $10\mu\text{m}$ [AITKEN, 1998].

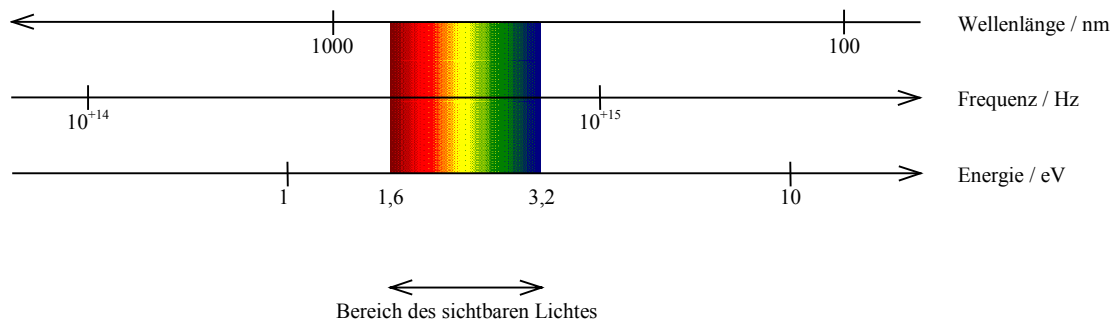


Abb. 6: Wellenlängenbereich des sichtbaren Lichtes

Falls der energetische Abstand einer Falle zum Leitungsband kleiner als die Energie der stimulierenden Photonen ist, kann ein Elektron aus einer Falle durch Absorption der Energie eines Photons in das Leitungsband angeregt werden und somit zur Emission eines Photons führen, das seinerseits Auskunft über die Dosis gibt. Werden nun die emittierten Photonen analog zur Verfahrensweise bei Thermolumineszenz instantan während des Stimulationsprozesses registriert, wobei die stimulierten von den emittierten Photonen scharf zu trennen sind, und die Zahl der emittierenden Photonen in Abhängigkeit der Dauer der Stimulation aufgetragen, so ergibt sich die einer Exponentialfunktion ähnliche Ausleuchtcurve (Abb. 7).

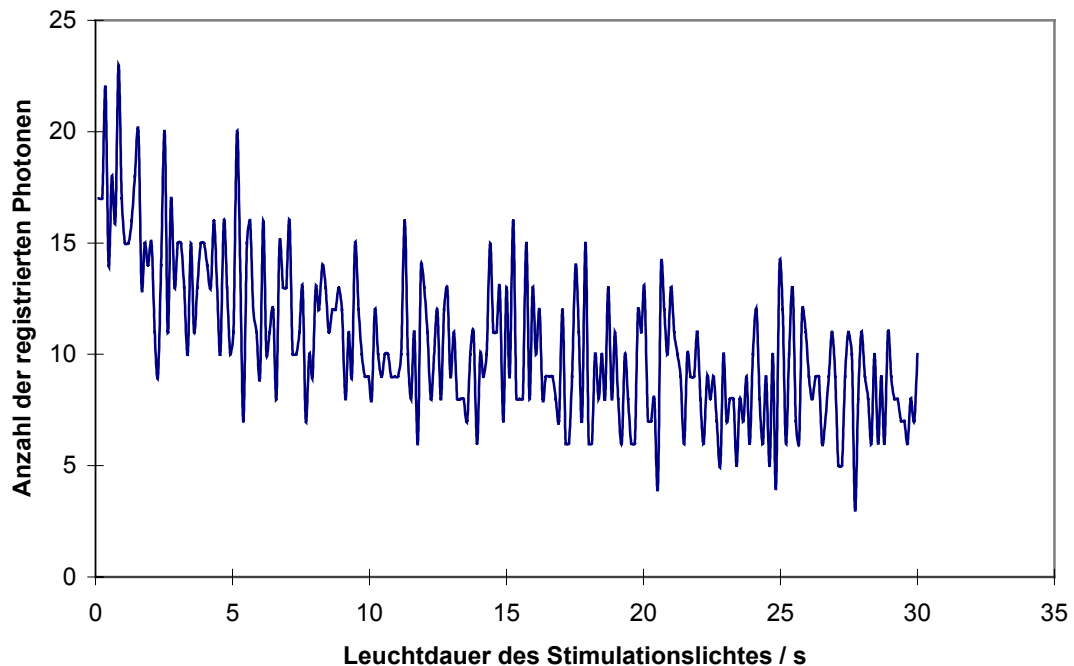


Abb. 7: Beispiel einer Ausleuchtcurve

Die Reaktion eines Elektrons in ein energetisch tieferes Niveau führt zwar in jedem Fall zum Freiwerden der Energiedifferenz, jedoch nicht unbedingt in Form eines Photons. Die freigewordene Energie kann dem Kristall auch wieder in Form von Wärme (Erzeugung eines Phonons) zu geführt werden.

Auch führt die Stimulation mit Photonen definierter Energie nicht zwangsläufig zur Anregung von Elektronen ins Leitungsband, selbst wenn der energetische Abstand der Fallen, die diese Elektronen beherbergen, zum Leitungsband geringer sein sollte als die Photonenenergie. Dies lässt sich am besten mit dem Frank-Condon-Prinzip erklären, wonach es auch bei energetisch positiver Bilanz bevorzugte, sog. „erlaubte“ Übergänge und unwahrscheinlichere, sog. „verbotene“ Übergänge gibt [LENK, 1989].

Aus diesen Gründen sowie der Möglichkeit des Wiedereinfangs von Elektronen in Fallen ergeben sich Ausleuchtcurven, deren Verlauf nicht mehr durch bloßes Exponentialverhalten beschrieben werden kann. Im Gegensatz zu den Glowkurven der Thermolumineszenz sind die Beiträge der verschiedenen Prozesse zur Ausleuchtcurve aus den gemessenen Kurven in vielen Fällen nicht herauslesbar.

Einschub: Theoretische Überlegungen zu Photonen-stimulierter Lumineszenz

Wie schon im Fall der Thermolumineszenz besteht auch hier das einfachste Modell aus einem Fallentyp, aus dem heraus die Elektronen durch die Stimulation mit Photonen ins Leitungsband angeregt werden, und einem Rekombinationszentrum, in das sie vom Leitungsband unter Aussendung eines Photons übergehen. Die Berechnung der Ausleuchtcurve in diesem einfachsten Fall ist aber ungleich einfacher, trotz der auch hier gegebenen Möglichkeit des Wiedereinfangs in der Falle. So gilt zu jedem Zeitpunkt

$$\frac{dn_L}{dt} = \frac{dm}{dt} - \frac{dn}{dt} \quad [12]$$

Wobei auch hier gilt:

- n_L : Anzahl der negativen Ladungen (Elektronen) im Leitungsband,
- n : Anzahl der in Fallen gefangenen Elektronen und
- m : Anzahl der in Rekombinationszentren gefangenen Lochzustände ist.

Mit der Annahme des Quasigleichgewichts (vgl. Einschub: Theoretische Überlegungen zu Thermolumineszenz), $dn_L/dt \ll dn/dt$, dm/dt , und unter Vernachlässigung der Möglichkeit des Wiedereinfangs, ergibt sich

$$I_{\text{PSL}} \propto -\frac{dm}{dt} \approx -\frac{dn}{dt} = nf, \quad [13]$$

wobei f die Rate darstellt, mit der Elektronen aus den Fallen ins Leitungsband angeregt werden. Es ergibt sich somit

$$I_{\text{PSL}} \propto n_0 f \exp(-tf) = I_0 \exp(-tf), \quad [14]$$

mit:

- n_0 : Anzahl der bei Beginn der Stimulation in Fallen gefangenen Elektronen und
- I_0 : Signalthöhe bei Beginn der Stimulation ist.

Nach diesem Modell würde die Ausleuchtcurve ein exponentiell zerfallendes Signal darstellen; dies ist in der Realität aber nur selten nachzuweisen. Wird aber die Möglichkeit

des Wiedereinfangs von Elektronen aus dem Leitungsband in die auszulesende Falle zugelassen, ergibt sich laut [MCKEEVER, 1997]:

$$I_{\text{PSL}} \propto I_0 \left(1 - \frac{n_0 f t A_m}{NA} \right)^{-2}, \quad [15]$$

wobei:

- A : die Wahrscheinlichkeit der Rekombination eines Elektrons vom Leitungsband mit einem an einem Rekombinationszentrum lokalisierten Lochzustand,
- A_m : die Wahrscheinlichkeit des Wiedereinfangs eines Elektrons in einer Falle und
- N : die Gesamtanzahl der Fallen ist.

Beide Signalverläufe (Gl. [14] und [15]) sind monoton fallend. Aufgrund ihrer großen Ähnlichkeit und dem generellen Fehlen markanter Strukturen wie z.B. Maxima in den Kurven ist in aller Regel bei einer gemessenen Kurve einer realen Probe nicht zu erkennen, welchem Signalverlauf sie folgt.

Abgesehen von den beiden diskutierten Fällen sind noch eine Vielzahl weiterer Modelle denkbar, wenn man weitere Fallentypen und Typen von Rekombinationszentren zulässt. Im Allgemeinen sind sich dennoch bis auf wenige Ausnahmen alle im Signalverlauf so ähnlich, dass das oben diskutierte Problem, aus einer real gemessenen Ausleuchtkurve nicht auf die physikalischen Gegebenheiten schließen zu können erhalten bleibt. Möchte man also Aufschluss über diese, können Thermolumineszenz-Messungen am gleichen Probenmaterial eine sinnvolle Ergänzung darstellen.

2.3.3 Sonderfall: Die Methode der infrarot stimulierten Lumineszenz (IRSL) an Feldspäten

Eine besondere Variante der Photonen-stimulierten Lumineszenz ist die infrarot stimulierte Lumineszenz (IRSL). Sie wurde 1988 entdeckt und tritt fast ausschließlich an

Feldspäten auf [HÜTT *et al.*, 1988]. Dabei wird mit infrarotem Licht ($E \approx 1,4\text{eV}$) stimuliert. Feldspäte - und nur diese - zeigen darauf hin ein sehr starkes Signal, das bei Untersuchung mit Thermolumineszenz mit einem Maximum in der Glowkurve bei ca. 300°C korreliert zu sein scheint. Diesem Maximum ist aber bei sorgfältiger Auswertung der Glowkurve eine Falle mit einem energetischen Abstand zum Leitungsband von 2eV zuzuordnen. In Quarz - obwohl Quarz über einen Fallentyp verfügt, der sich durch einen energetischen Abstand von $0,8\text{eV}$ zum Leitungsband auszeichnet - tritt infrarot stimulierte Lumineszenz überhaupt nicht auf, sodass sich IRSL in Kürze als ein Verfahren etabliert hat, die Reinheit von Quarz auf evtl. vorhandene Feldspat-Verunreinigungen zu prüfen.

Die hohe Lichtausbeute, die sich mit IRSL erzielen lässt, macht diese Methode einerseits attraktiv für Messungen von sehr niederen Dosen. Andererseits haben TL-Messungen an Feldspäten seit den frühen 70er Jahren immer wieder das Phänomen des sog. anomalen Fadings gezeigt [WINTLE, 1973]. Dabei handelt es sich um einen starken Signalverlust innerhalb von sehr kurzer Zeit, der sich durch thermische Anregung von Elektronen ins Leitungsband nicht erklären lässt. Es wurden in der Zeit bisher eine Reihe von Erklärungen für dieses Phänomen gefunden, keine war aber eindeutig zu belegen (Zusammenschau dieser Erklärungsansätze: [AITKEN, 1998]). Was auch immer Hintergrund dieses Phänomens ist, es macht in den entsprechenden Einzelfällen eine Auswertung sehr schwer, wenn nicht unmöglich. Aus diesem Grund und der Tatsache, dass die meisten Anwender von Lumineszenz-Methoden geologische Datierungen vornehmen und daher mit sehr hohen Dosen zu arbeiten haben und nicht mit dem Problem sehr kleiner Dosen kämpfen müssen, liegt derzeit noch keine große Anzahl von Arbeiten vor, die die infrarot stimulierte Lumineszenz zur quantitativen Auswertung von Dosen verwendet hat.

Einschub: Theoretische Überlegungen zu infrarot stimulierter Lumineszenz

Bei der Untersuchung des Stimulationsspektrum von Feldspäten wurden Stimulationsmaxima bei Photonenenergien von $1,29\text{eV}$, $1,33\text{eV}$, $1,43\text{eV}$ und $2,25\text{eV}$ entdeckt [HÜTT *et al.*, 1988]. Im Wellenbild des Lichtes liegen die ersten drei davon im infraroten Bereich. Als man begann, die Ursachen dieser Stimulation zu untersuchen - was man wie oben erläutert durch Vergleich mit Thermolumineszenz-Messungen machte (vgl. Einschub:

Theoretische Überlegungen zur Photonen-stimulierten Lumineszenz) -, fand man wider Erwarten, dass die infrarot stimulierte Lumineszenz mit Fallen verknüpft ist, deren energetischer Abstand zum Leitungsband mit ca. 2eV verknüpft wird und somit deutlich größer ist als die Photonenenergie der stimulierenden Photonen. Es wurde darauf hin ein Modell entwickelt, das heute gelegentlich nach den Autoren Hütt, Jaek und Tschonka das HJT-Modell genannt wird (Abb. 8). Dieses geht davon aus, dass im Feldspat die Fallen mit energetischem Abstand zum Leitungsband von ca. 2eV verschiedene Anregungszustände mit Anregungsenergien von 1,3...1,4eV besitzen. Die Stimulation mit infrarotem Licht hebt die Elektronen dorthin an und von dort - ca. 0,8eV unterhalb des Leitungsbandes - ist eine thermische Anregung ins Leitungsband auch bei Raumtemperatur möglich. Man spricht von „thermischer Unterstützung“.

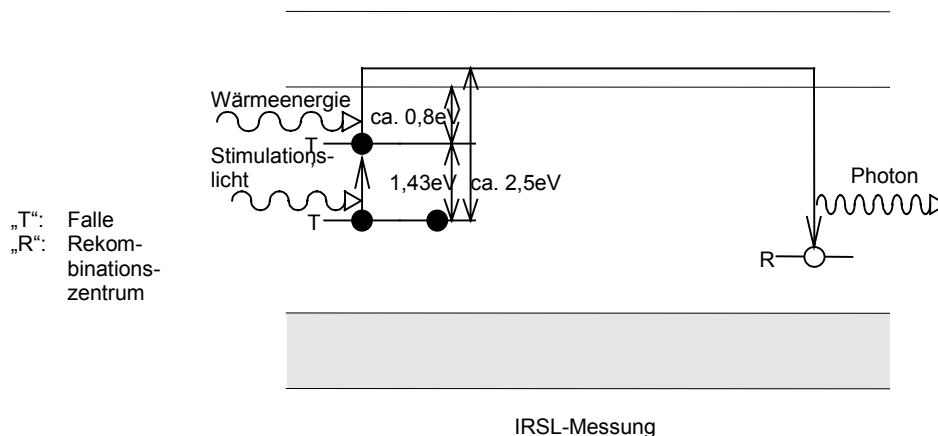


Abb. 8: Das Hütt-Jaek-Tschonka-Modell für die infrarot stimulierte Lumineszenz des Feldspats

Das HJT-Modell konnte zwar zunächst durch experimentelle Arbeiten unterstützt werden [HÜTT *et al.*, 1988], jedoch fanden sich auch bald Ergebnisse, die nicht in dieses Bild passten [BAILIFF & POOLTON, 1991]. Bei Bestimmung der thermischen Aktivierungsenergie wurde ein Wert von 0,1eV gefunden - ein gegenüber dem im HJT-Modell geforderten Wert von 0,8eV viel zu kleiner Wert. Aus diesen und anderen Ergebnissen [BØTTER-JENSEN *et al.*, 1994] wurden Korrekturen zum HJT-Modell entwickelt, die zusätzlich zur Anregung ins Leitungsband die Möglichkeit eines lokalen Übergangs vorsehen [POOLTON *et al.*, 1995]. Dabei rekombiniert das Elektron direkt von dem oben

beschriebenen Anregungszustand mit einem Lochzustand an einem lokalen Rekombinationszentrum. Das Elektron würde dabei das Leitungsband nie erreichen und entsprechend nie wirklich delokalisiert sein. Die Autoren sprachen daher nicht von „Fallen“ und „Rekombinationszentren“, sondern in Anlehnung an die Halbleiterphysik von „Donatoren“ und „Akzeptoren“.

Aufgrund der noch immer bestehenden Unklarheit über die tatsächlich ablaufenden physikalischen Mechanismen - möglicherweise laufen mehrere parallel ab -, konnte bisher auch keine Theorie entwickelt werden, die sich bei infrarot stimulierter Lumineszenz ergebende Ausleuchtcurve zu berechnen. Sollte sich das Bild des lokalen Übergangs bestätigen, hängt der Verlauf sicher u.a. vom Abstand der Donatoren und Akzeptoren ab. Dabei nimmt allerdings mit zunehmender Ausleuchtdauer die Konzentration von Donatoren und Akzeptoren ab, d.h. der Abstand zu. Für hohe Konzentrationen errechnet sich ein zeitlicher Verlauf der Ausleuchtcurve $\propto t^{-2}$ und für niedere Konzentrationen $\propto t^{-1}$ [MCKEEVER, 1997].

2.3.4 Die Methode der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz (PPSL)

2.3.4.1. *Beschreibung der Methode und Erläuterung ihrer Vorzüge*

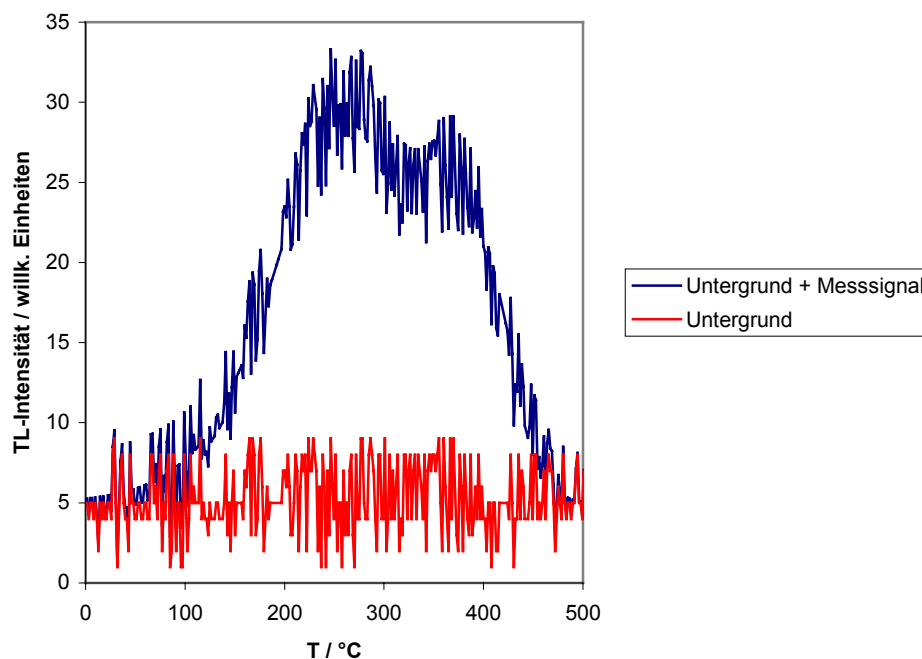
In den Kapiteln 2.3.1 und 2.3.2 wurden physikalische Effekte – Thermolumineszenz und Photonen-stimulierte Lumineszenz – vorgestellt, die die Messung eines dosisabhängigen Signals erlauben. In beiden Fällen sind Photonen zu detektieren. Dabei werden aber auch Signale festgestellt, die nicht mit den oben erläuterten Phänomenen in Zusammenhang stehen. Diese Signale rekrutieren sich aus dem Rauschen der Messelektronik und – im Fall von PSL – aus Stimulationsphotonen, die fälschlich als vom Kristall emittierte Photonen registriert werden. Sie stellen den Messuntergrund dar. Die Signale sind stochastischer Natur und unterliegen der Zählstatistik. In der Glowkurve der Thermolumineszenz bzw. in der Ausleuchtcurve der Photonen-stimulierten Lumineszenz manifestieren sie sich bei unbestrahlten Proben durch eine in seiner Amplitude schwankenden, in seinem

über die gesamte Kurve gemittelten Betrag aber konstanten Beitrag (Abb. 9; rote Kurven). Der dosisabhängige Beitrag zur Gesamtkurve (Abb. 9; blaue Kurven), das eigentliche Messsignal, steht darüber. Um diesen zu ermitteln, muss der Messuntergrund festgestellt und von der Gesamtkurve abgezogen werden.

Bei Thermolumineszenz-Messungen lässt sich der Untergrund ermitteln, indem man eine bereits gemessene Probe noch mal dem gleichen Heizverfahren unterwirft. Da bei der ersten Messung das Gesamtsignal gelöscht wurde, ist das Signal, das bei der Messwiederholung festgestellt wird, durch allein den Untergrund bestimmt.

Bei Photonen-stimulierter Lumineszenz können, wie oben bereits erwähnt, zwei Komponenten des Untergrundes auftreten: zum Einen von der Stimulationslichtquelle emittierte Photonen, zum Anderen der Messuntergrund des für die Detektion von Photonen notwendigen Messgerätes, des Sekundärelektronenvervielfachers.

a) Thermolumineszenz:



b) Photonen-stimulierte Lumineszenz:

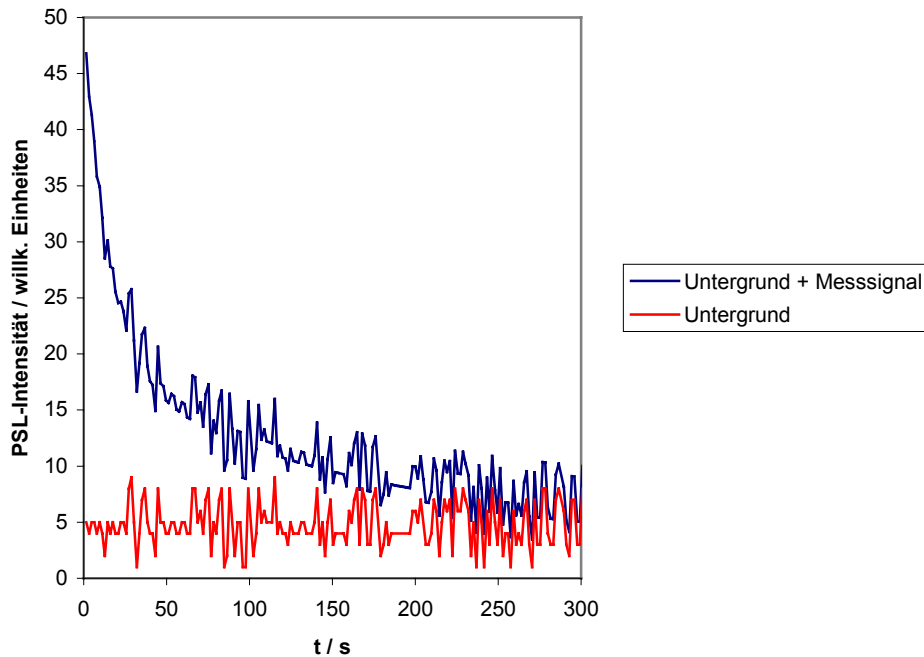


Abb. 9: Zusammensetzung des gemessenen Signals aus Messuntergrund und dosisabhängiges Signal für a) Thermolumineszenz und b) Photonen-stimulierte Lumineszenz (simulierte Messkurven)

Die von der Stimulationslichtquelle emittierten Photonen werden durch geeignete Wahl der Stimulationlichtquelle (Emission von Photonen aus einem möglichst schmalbandigen Energiebereich) und durch einen geeigneten Satz Filter unterdrückt.

Der Messuntergrund eines Sekundärelektronenvervielfachers wird durch zufällige Ereignisse, wie Detektion terrestrischer und kosmischer Strahlung am Standort des Messgerätes, Detektion von Strahlung von Radionukliden in Materialien des Messgerätes selbst und dem elektronischen Rauschen der gesamten Messmimik bestimmt. Diese Untergrundereignisse werden durch die Hochspannung, die an einem Sekundärelektronenvervielfacher anliegt, verstärkt. Diese Verstärkung kann aber Schwankungen unterliegen, was eine Fluktuation des Messuntergrundes hervorruft¹². Zudem besitzt ein Sekundäre-

¹² Ursache dieser Schwankungen können beispielsweise Fluktuationen in der Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers (vgl. Fußnote 9, S.9) oder Fluktuationen der an der Messeinrichtung anliegenden Hochspannung, hervorgerufen durch Frequenz-Schwankungen im Stromnetz, sein.

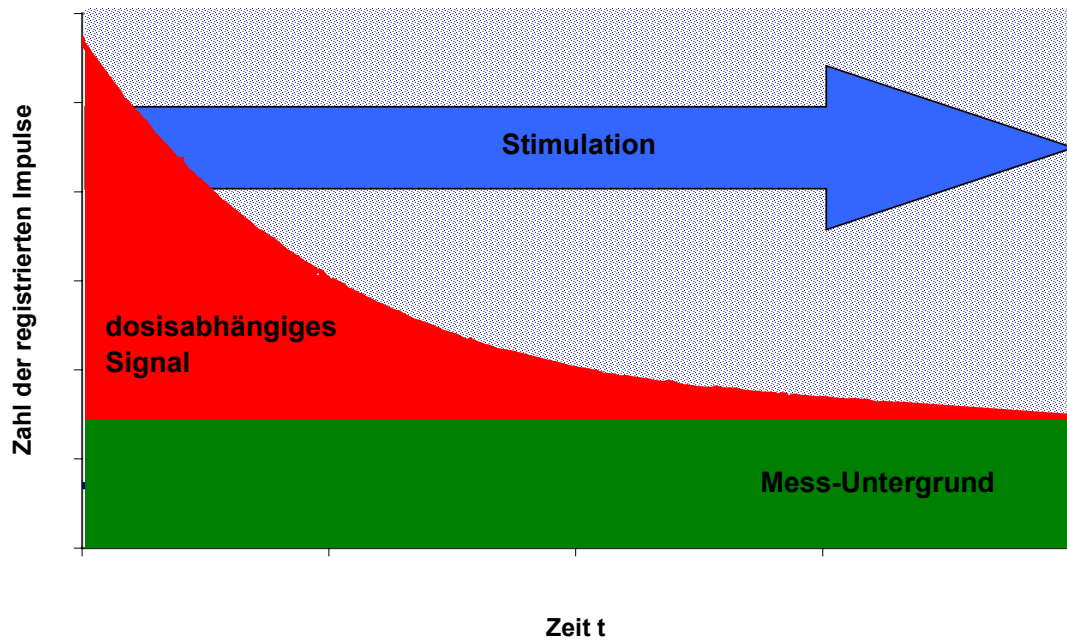
lektronenvervielfacher einen gewissen „Erinnerungseffekt“: Unmittelbar nach Messung sehr hoher Photonenflüsse steigt seine Empfindlichkeit für kurze Zeit an und somit ist auch die Zahl der registrierten Untergrundereignisse unmittelbar nach Messung sehr hoher Photonenflüsse erhöht.

Die gängige Praxis in den meisten Laboren, die Strahlendosen mithilfe von PSL-Methoden ermitteln (es handelt sich dabei in aller Regel um Datierungsarbeiten und daher häufig um hohe Dosen), zur Ermittlung des Untergrundes ist, die Messproben so lange zu stimulieren, bis man das Vertrauen hat, nur noch den Untergrund zu detektieren. Dieser wird dann auf die gesamte Messung zurückextrapoliert („*late-light-Verfahren*“). Bei diesem Verfahren wird vorausgesetzt, dass der Untergrund über die Dauer der gesamten Messung konstant ist. Eine Änderung des Messuntergrundes über die Dauer der Messung würde bei steigendem Untergrund zwangsläufig zu einer Überschätzung des Gesamtuntergrundes und somit zu einer Unterschätzung des Messwertes, bei sinkendem Untergrund zu einer Unterschätzung des Gesamtuntergrundes und somit zu einer Überschätzung des Messwertes führen (vgl. Abb. 10). Dies fällt bei kleinen Messsignalen, wie bei Messungen in der retrospektiven Dosimetrie zu erwarten, besonders ins Gewicht und kann im Grenzfall zu einem Nicht-Erkennen einer Dosis führen.

Ein „Triften“ des Messuntergrundes wurde vor allem in Laboren in sehr humidem Klima, z.B. im Lumineszenzlabor des „Instituto Tecnológico e Nuclear“ in Lissabon, Portugal, oder im Lumineszenzlabor der „School of Geology and Geography“ an der McMaster Universität in Hamilton, Kanada, beobachtet [Richter, 2001]. Ein möglicher Hintergrund für diese Erscheinung könnte in Kriechströmen liegen, die innerhalb der Messapparatur durch hohe Luftfeuchtigkeit induziert werden und auf das elektronische Rauschen der gesamten Messmimik Einfluss nehmen [Richter, 2001].

Um den Untergrund also korrekt zu erfassen, ist eine zeitnahe Messung des Untergrundes erforderlich. Diese wird durch die Aufteilung der Messungen des Gesamtsignals und der des Untergrundes in je n Teilmessungen, abwechselnd nacheinander, erreicht. Dabei wird je ein kleines Stück der Ausleuchtcurve gemessen, anschließend der entsprechende Untergrund festgestellt und sofort abgezogen. Das Stimulationslicht muss somit regelmäßig an- und ausgeschaltet werden. Zerteilt man die Gesamtmessung in eine sehr große Zahl von Teilmessungen, d.h. wird die Leuchtperiode des Stimulationslichtes sehr kurz, so spricht man von Pulsung des Stimulationslichtes und – entsprechend – von der Messmethode der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz.

a)



b)

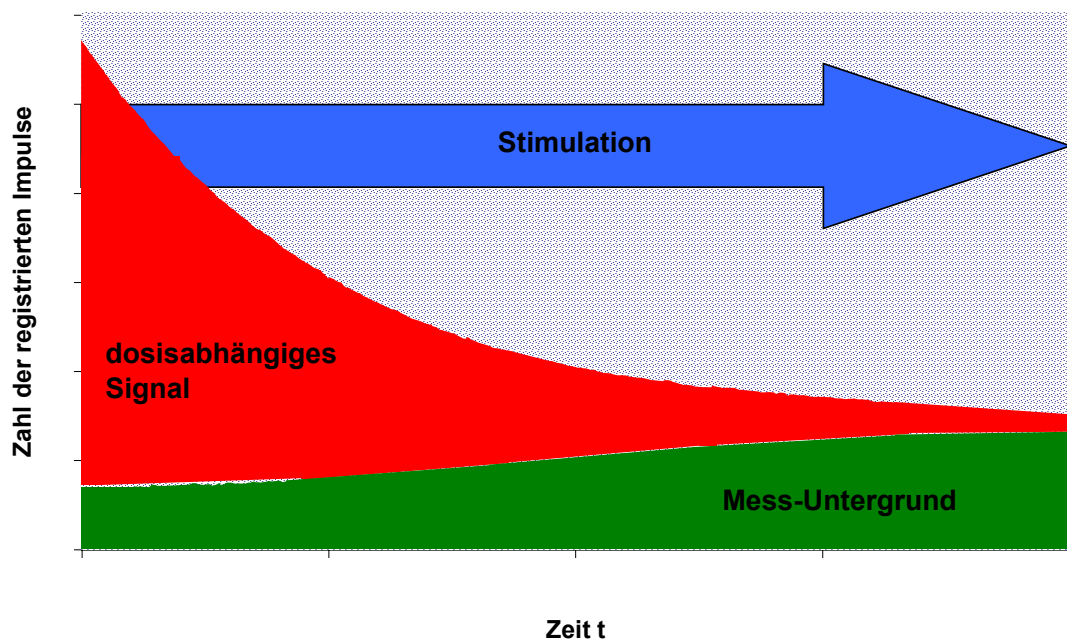


Abb. 10: Bestimmung des dosisabhängigen Signals mittels PSL bei a) konstantem Messuntergrund und b) triftendem (hier: steigendem) Messuntergrund

Das Messprinzip der PPSL-Methode ist in Abb. 11 dargestellt. Die Phasen, Δt , der Stimulation sind durch blaue Schraffur gekennzeichnet. Dazwischen befinden sich genauso lange Phasen ohne Stimulation, ebenfalls der Dauer Δt . Bei dem registrierten Messwert handelt es sich um die Summe aller während einer bestimmten Zeitdauer erfassten Signale. Der Messwert ist daher das Integral über die Funktion der Anzahl der erfassten Signale über der Zeit und somit in Abb. 11 als Flächen dargestellt. Der Messwert während der Stimulationsphase setzt sich zusammen aus dem dosisabhängigen Signalen, die von Photonen herrühren, die ihrerseits infolge der Rekombination von Elektronen aus Fallen in Rekombinationszentren von der Probe emittiert wurden (Abb. 11, zartrote Flächen), und dem Untergrund (Abb. 11, grüne Flächen). In den Phasen zwischen den Stimulationen wird nur der Untergrund registriert. Dieser kann sowohl aufgrund des „Erinnerungseffektes“ des Sekundärelektronenvervielfachers als auch aufgrund kurzfristiger Schwankungen der Messempfindlichkeit (vgl. Kap. 2.3.4.1) leicht variieren. Dabei ist im Mittel der Untergrund während der Stimulationsdauer genauso groß wie in den Phasen zwischen den Stimulationen. Der rein dosisabhängige Nettomesswert ergibt sich für eine Stimulationsphase aus der Subtraktion des Messwertes gemessen während dieser Stimulationsphase und dem Untergrund, gemessen in der Phase Δt nach der Stimulation. Die Summe sämtlicher Nettomesswerte ergibt somit den rein dosisabhängigen und vom Untergrund bereinigten Gesamtwert (Abb. 11, Summe sämtlicher zartroter Flächen).

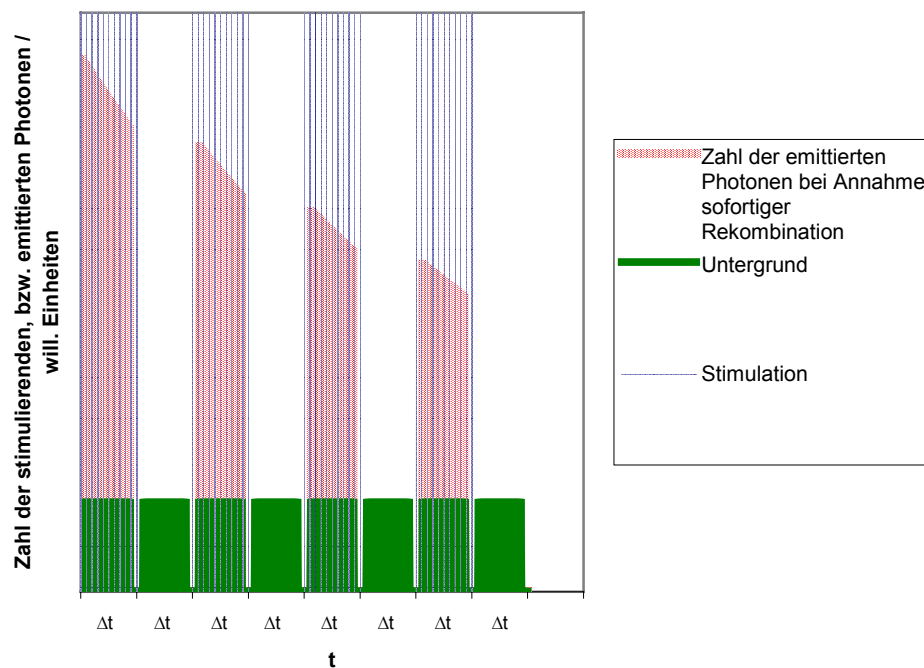


Abb. 11: Zeitlicher Verlauf von Stimulation und Emission von Photonen

Vorzug der oben beschriebenen Art der Untergrundbestimmung ist nicht nur die Möglichkeit der Erfassung eines von der Höhe des Photonenflusses abhängigen Untergrundes, sondern auch die Berücksichtigung von Fluktuationen der an der Messvorrichtung anliegenden Hochspannung im Zeitbereich einiger Sekunden bis Minuten.

2.3.4.2. Einwände und Vorbehalt gegen die Methode

Die PPSL-Methode wurde, wie eingangs bereits erwähnt, zur Untersuchung von Lebensmitteln auf ggf. zuvor erfolgter Behandlung mit ionisierender Strahlung entwickelt. Die Fragestellung lautet in diesem Fall: Ist eine Bestrahlung erfolgt oder nicht? Es geht hierbei weniger oder gar nicht um eine Quantifizierung von evtl. vorhandenen Dosen. Die Methode bietet sich für diese Anwendung an, da sie einerseits kein Heizen der Probe verlangt. Andererseits können organische Proben ein erhebliches dosisunabhängiges Untergrundsignal zeigen, das für eine Bestrahlt-oder-nicht-Entscheidung in jedem Fall berücksichtigt werden muss. Das Heizen der Probe würde bei organischen Proben (und um solche handelt es sich bei Lebensmitteln in der Regel) eine aufwändige Probenaufbereitung erfordern, da andernfalls die organischen Anteile verbrennen und zusätzlich zur Gefährdung des Messgerätes erhebliche Störsignale verursachen würden. Die Nichtberücksichtigung des Untergrundsignals würde ein Signal zur Folge haben, das nicht erkennen lässt, ob es strahlungsinduziert ist oder nicht.

Der Vorschlag, das PPSL-Messsignal aber zu quantifizieren und daraus eine Dosis abzuleiten, löste bei in der Lumineszenz-Dosimetrie und -Datierung langjährig erfahrenen Wissenschaftlern Skepsis aus [GÖKSU, 2000; KRBETSCHKEK, 2001]. Der Grund hierfür liegt in der Frage, ob es sich bei dem subtrahierten Signal tatsächlich um den Untergrund handelt. Der physikalische Hintergrund liegt in der theoretischen Deutung des Rekombinationsprozesses (vgl. Kap. 2.3.1 und 2.3.2), wonach sich das rekombinierende Elektron eine endliche Zeitspanne Δt_1 im Leitungsband aufhalten muss. Diese Zeitspanne kann sogar noch dadurch verlängert werden, dass das Elektron wiederholt von dem Leitungsband nahen Fallen (sog. „shallow traps“) eingefangen werden kann, aus denen es zwar rasch wieder durch thermische Anregung entkommt, in denen es aber zusätzlich eine ebenfalls endliche Zeitspanne Δt_2 verweilt (Abb. 12).

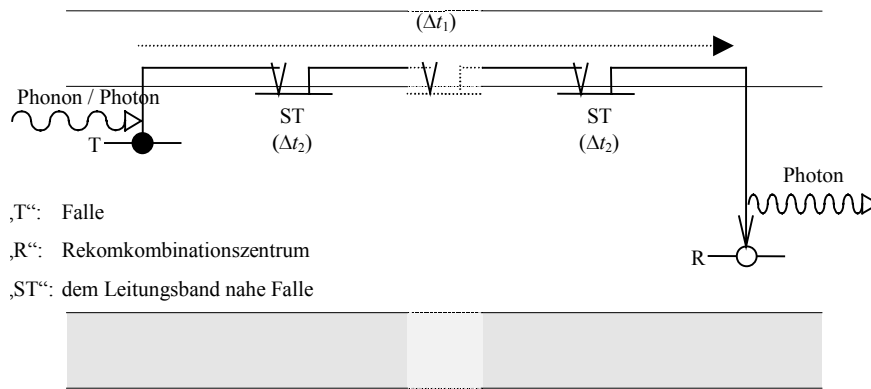


Abb. 12: Rekombination eines Elektrons mit Zwischeneinfang des Elektrons in dem Leitungsband nahen Fallen mit Angabe der Verweildauer im Leitungsband Δt_1 , bzw. in den dem Leitungsband nahen Fallen Δt_2

Dies bedeutet, dass mit Einschalten der Stimulation die Zahl der emittierten Photonen nicht sofort das der Zahl der in Fallen gefangenen Elektronen entsprechende Maß erreichen kann, dass somit in einem kurzen Zeitraum nach Anschalten der Stimulation dieses Maß unterschätzt wird. Gleichwohl bedeutet dies, dass nach Abschalten der Stimulation ein gewisser Anteil der Elektronen immer noch „unterwegs zu Rekombinationszentren“ ist, und dass somit bei Subtraktion des Signals unmittelbar nach Abschalten der Stimulation nicht nur der Untergrund erfasst wird, sondern auch ein Teil des dosisabhängigen Messsignals selbst. Bei einem rechteckförmigen Stimulationsverlauf erwartet man den in Abb. 13 dargestellten zeitlichen Verlauf des Messsignals.

Konsequent bedeutet dies, dass während der Ermittlung des Untergrundes in den Zeiträumen zwischen den Stimulationsphasen nicht nur das Untergrundsignal registriert wird (Abb. 13, grüne Fläche), sondern zudem der durch Δt_1 und Δt_2 verzögerte Anteil des dosisabhängigen Signals (Abb. 13, rote Fläche zwischen den Stimulationsphasen). Somit wird ein reduziertes Signal registriert und die wahre Dosis unterschätzt.

Die Zeitkonstanten, die den Anstieg des Signals nach Anschalten der Stimulation, bzw. nach das Abklingen des Signals nach Abschalten der Stimulation beschreiben, sind durch Δt_1 und Δt_2 festgelegt. Der Fehler, der dadurch erzeugt wird, reduziert sich aber, je länger die Stimulationsphasen bzw. die Phasen dazwischen gegenüber den Zeitspannen Δt_1 und Δt_2 sind.

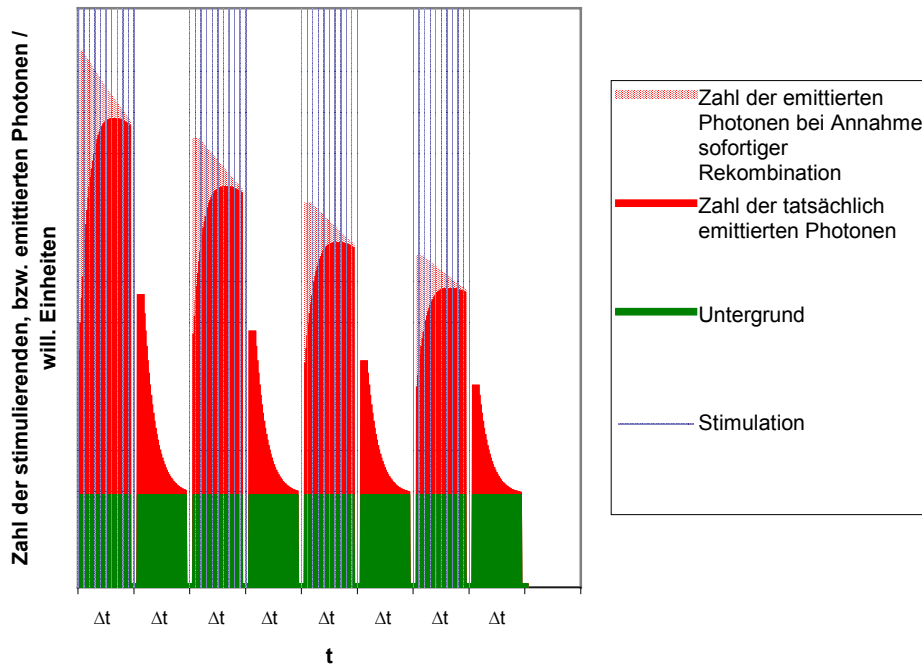


Abb. 13: Zeitlicher Verlauf von Stimulation und Emission von Photonen unter Berücksichtigung des Überganges von Elektronen von Fallen in Rekombinationszentren in endlichen Zeiten

Für Feldspat typische Zeitspannen für die Rekombination von Elektronen aus Fallen in Rekombinationszentren wurden kürzlich ermittelt [CLARK *et al.*, 1998]. Da Feldspat in verschiedenen mineralischen Erscheinungsformen auftritt, wurde eine ganze Reihe verschiedener Proben untersucht. Bei den untersuchten Feldspat-Mineralen handelt es sich um vier verschiedene Orthoklase (Perthit, Mondstein und Irkutsk Orthoklas), Amelia Albit, Sanidin und Oligoklas. Dies sind alles unterschiedliche, der Gruppe der Feldspäte angehörenden Mineralarten, die sich in kristalliner Struktur und chemischer Zusammensetzung unterscheiden. Es ergab sich aber trotz der Unterschiede ein für alle Proben gleichförmiges Bild: Ein dosisabhängiges Signal S klingt nach Abschalten der Stimulation mit infrarotem Licht ($\lambda \approx 850\text{nm}$) mit

$$S = \sum_i a_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$

als eine Summe von Exponentialfunktionen ab. Bei allen Proben ließ sich das Abklingen durch 4 oder 5 Summanden mit jeweils unterschiedlichen Abklingzeiten τ_i darstellen. Die

Ursache hierfür dürfte in dem Vorhandensein verschiedener Fallen und Rekombinationszentren sein. Generell für alle Proben liegen die Abklingzeiten zwischen einigen 10ns und einigen 10 μ s. Den bei weitem überwiegenden Anteil zum Gesamtsignal S mit 90% - 98% trägt ein Summand mit einer charakteristischen Abklingzeit von – für alle Proben – $\tau_1 \approx 30$ ns. Die weiteren Summanden zeichnen sich durch Abklingzeiten von $\tau_2 \approx 400$ ns, $\tau_3 \approx 700$ ns, $\tau_4 \approx 4\mu$ s und $\tau_5 \approx 15\mu$ s. Diese tragen aber zum Gesamtsignal nur im Wenige-Prozent- oder Unterprozentbereich bei.

Dies bedeutet für die in dieser Arbeit vorliegenden Messungen, dass bei Stimulationsphasen (bzw. deren zeitlichen Abstand zueinander) von mindestens 10 μ s ein systematischer Fehler der Messung im Bereich weniger Prozent zu erwarten ist. Dies unterschreitet bei weitem die restlichen Messunsicherheiten, sodass die daraus resultierende Unterschätzung des Ergebnisses in der vorliegenden Arbeit toleriert wurde.

2.4 Die Interpretation des dosisabhängigen Signals

Um schließlich dem dosisabhängigen Signal auch eine Dosis zuordnen zu können, muss man in jedem Fall Vergleichsbestrahlungen mit definierten Dosen durchführen und das aus diesen resultierende Ergebnis feststellen. Die Abhängigkeit der Signalthöhe von der Dosis folgt in einem mittleren Dosisbereich von einigen Gy bis hin zu einigen 10Gy in der Regel für TL wie für PSL einem linearen Zusammenhang. Für PSL gilt dies in aller Regel auch bis hin zu kleinsten Dosen. Im Bereich von einigen wenigen Gy und darunter zeigt sich für TL sehr häufig ein supralineares Verhalten. Für sehr hohe Dosen (100Gy und darüber) geht die Signalthöhe für alle Verfahren in Sättigung, d.h. es zeigt sich sublineares Verhalten. Da das Signalverhalten einer Probe im Einzelfall nicht von vornherein klar ist, ist eine Reihe von Vergleichsbestrahlungen nötig. Dazu haben sich zur Interpretation des dosisabhängigen Signals im wesentlichen zwei Verfahren entwickelt: das Additiv-Verfahren und das Regenerativ-Verfahren.

2.4.1 Das Additiv-Verfahren

Beim Additiv-Verfahren (Abb. 14) teilt man die Probe in mehrere Teilproben, sog. Aliquote. Bei einem Satz dieser Aliquote wird die Lumineszenz (dies gilt für alle Arten von Lumineszenz-Bestimmungen – TL, PSL, PPSL, CL) direkt, d.h. ohne jede weitere Bestrahlung, festgestellt (in der Abb. 14: roter Punkt). Die anderen Aliquote bestrahlt man mit unterschiedlichen, weiteren Dosen. Diese werden Additivdosen genannt, da sie zusätzlich zu der bereits dem Probenmaterial aufgeprägten Unfall- und Altersdosis appliziert werden. Nach der Bestrahlung werden dann die entsprechenden Lumineszenz-Signale festgestellt (in der Abb. 14: blaue Punkte). Die Messergebnisse werden als Funktion über die zusätzlich zur zu messenden Dosis verabreichten Additivdosen aufgetragen.

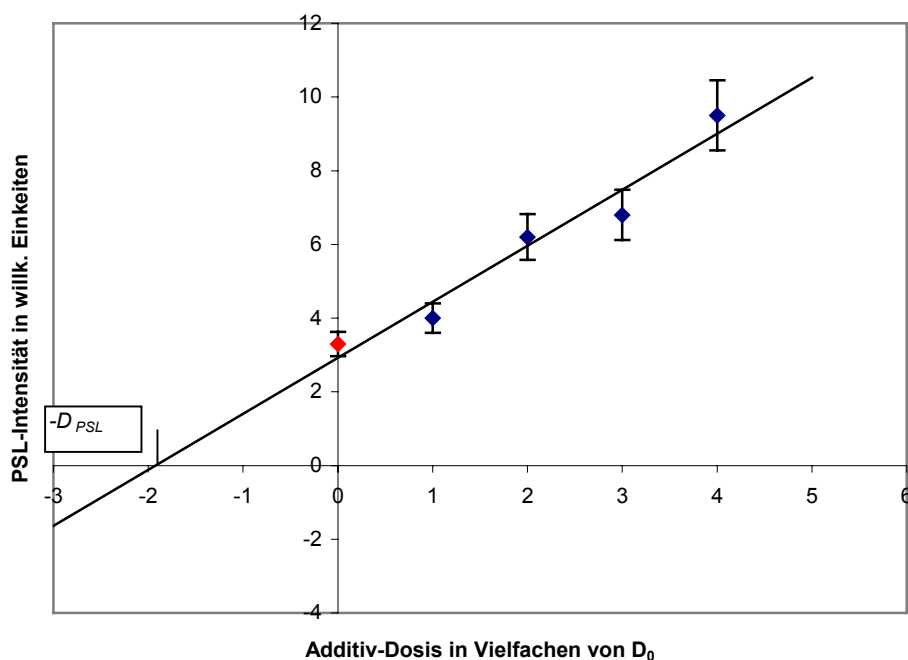


Abb. 14: Additiv-Verfahren: Verlauf des Lumineszenz-Signals, aufgetragen über Vielfachen einer beliebigen Additiv-Dosis D_0

Im niederen Dosisbereich, der typisch ist für dosimetrische Messungen (0Gy ... 10Gy), ist ein lineares oder supralineares Verhalten zu erwarten. Die Frage nach dem linearen Verhalten wird bereits durch die Additivdosen geklärt. Durch Extrapolation in den Bereich negativer Labordosen wird dann die auf die Probe applizierte Dosis ermittelt. Um der Gefahr einer Unterschätzung dieser Dosis durch ein evtl. im niedrigsten Dosisbereich

vorhandenes supralineares Verhalten vorzubeugen, wird das Signal bei einem Teil der Proben durch Einwirkung von Wärme oder intensiver Beleuchtung gelöscht und durch Verabreichung einer Reihe verschiedener kleiner Dosen die Signalabhängigkeit von der Dosis überprüft. Dabei ist darauf zu achten, dass, sobald diese zweite Kurve die Signalthöhe der ersten erreicht hat, die beiden parallel, d.h. mit gleicher Steigung verlaufen. Ist dies nicht der Fall, so hat durch das Löschen des ursprünglichen Signals und das Wiederbestrahlen eine Empfindlichkeitsänderung stattgefunden; die Messung ist dann nicht auszuwerten.

Vorzug dieses Verfahrens ist die Möglichkeit auf Prüfung einer evtl. Verfälschung der Auswertung durch die Messung selbst. Der Nachteil aber besteht darin, dass man möglicherweise mit sehr vielen Einzelproben arbeiten muss, wodurch die Unsicherheit der Auswertung aufgrund von Mittelungsprozessen relativ groß ist. PSL bietet hier gegenüber TL generell die Möglichkeit, sämtliche Messungen an einer Teilprobe durchzuführen. Trotzdem ist auch hier auf etwaige Empfindlichkeitsänderungen zu prüfen.

Zu weiteren Aspekten vgl. Kap. 6.1.2.2 und 6.1.2.3.

2.4.2 Das Regenerativ-Verfahren

Auch beim Regenerativ-Verfahren (Abb. 15) wird die Gesamtprobe in mehrere Teilproben (Aliquote) geteilt und auch bei diesem Verfahren wird das Lumineszenz-Signal eines Satzes von Aliquoten festgestellt (in der Abb. 15: roter Punkt). Alle anderen Aliquote werden entweder Wärme oder intensiver Beleuchtung ausgesetzt. Dabei wird durch die in den Kap. 2.3.1 und 2.3.2 beschriebenen Mechanismen das gesamte dosisabhängige Signal gelöscht. Durch Bestrahlung dieser Aliquote mit definierten Dosen und anschließender Messung der entsprechenden Lumineszenz-Signale (in der Abb. 15: blaue Punkte), wird die Dosis gesucht, die ein dem ursprünglichen Signal (in der Abb. 15: roter Punkt) am nächsten stehendes Signal erzeugt. Diese verabreichten Labordosen werden Regenerativdosen genannt, weil sie dazu dienen, das ursprüngliche Signal zu regenerieren.

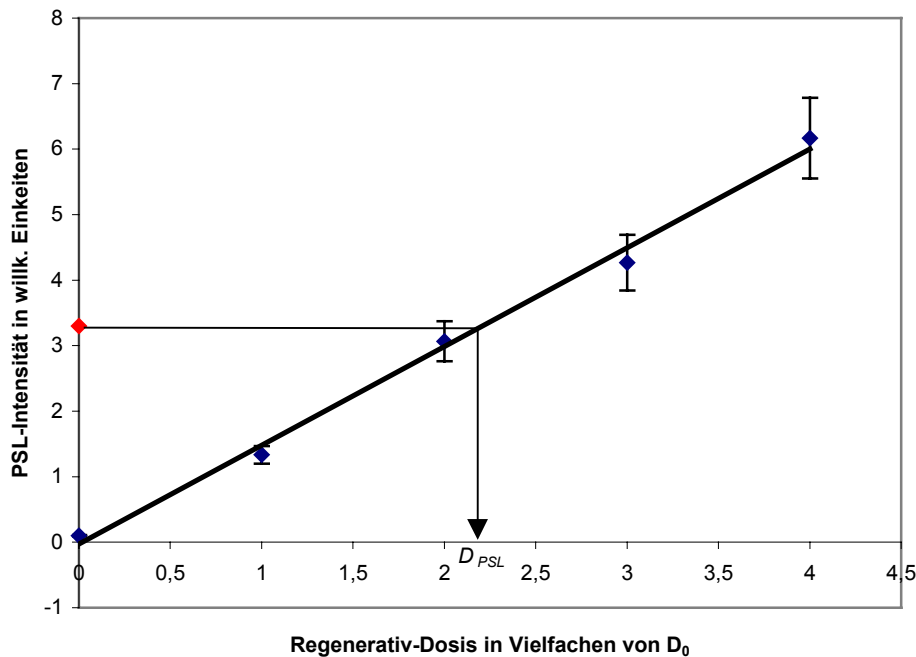


Abb. 15: Regenerativ-Verfahren: Verlauf des Lumineszenz-Signals, aufgetragen über Vielfachen einer beliebigen Regenerativ-Dosis D_0

Der Vorzug dieses Verfahrens kommt im Besonderen dann zum Tragen, wenn für den Verlauf der Signalhöhe über der Dosis nicht von einem linearen Verhalten ausgegangen werden kann. Der Nachteil des Verfahrens ist, dass eine Überprüfung auf eine evtl. veränderte Empfindlichkeit der Signalhöhe gegenüber der Dosis nicht mehr möglich ist.

Zu weiteren Aspekten vgl. Kap. 6.1.2.2 und 6.1.2.3.

2.4.3 Das Single-Aliquot- und Multiple-Aliquot-Verfahren

Eine besondere Eigenschaft der PSL- und PPSL-Methode ist die Möglichkeit, mithilfe sehr kurzer Stimulationsdauern (d.h. Zeiträumen, in denen nur ein sehr kleiner Anteil der Fallen ausgelesen werden können) die Messung der natürlichen Lumineszenz (beruhend auf Alters- und ggf. Unfalldosis) sowie der Lumineszenz der Vergleichsbestrahlungen (beruhend auf den Additiv- oder Regenerativdosen) an ein und derselben Teilprobe vorzunehmen. Man spricht in diesem Fall vom „Single-Aliquot-Verfahren“. Verwendet man hingegen mehrere Teilproben, so spricht man vom „Multiple-Aliquot-Verfahren“.

Der besondere Vorzug des Single-Aliquot-Verfahrens liegt darin, dass eine Dosisrekonstruktion mit viel weniger Probenmaterial möglich ist. Weitere Vorzüge des Single-Aliquot-Verfahrens liegen bei der Bestimmung der Messunsicherheiten; sie werden im Detail in Kap. 6 erläutert.

Trotz der Vorzüge ist das Single-Aliquot-Verfahren nicht generell anwendbar: Wenn das Signal bei Beleuchtung (Stimulation) sehr rasch abklingt oder sich die Empfindlichkeit eines Probenmaterials bei Messung verändert, muss sich die Dosisrekonstruktion auf das Multiple-Aliquot-Verfahren stützen.

2.5 Die Bestimmung der Altersdosis

Mit Lumineszenzmethoden und den dazugehörigen Verfahren, wie sie in den Kap. 2.3 und 2.4 vorgestellt wurden, lässt sich nur die gesamte einer Probe applizierte Dosis D_{gesamt} bestimmen. Im Falle eines außergewöhnlichen Ereignisses setzt sich diese aus der Unfalldosis und der Altersdosis, die separat bestimmt werden muss, zusammen:

$$D_{gesamt} = D_{Unfall} + D_{Alter} . \quad [16]$$

Die Altersdosis wird üblicherweise durch Messung und Abschätzung der verschiedenen auf eine Probe einwirkenden Beiträge der Dosisleistungen natürlicher Quellen von ionisierender Strahlung sowie der Kenntnis des Alters einer Probe bestimmt. Derartige Quellen sind:

- Terrestrische Strahlung durch Zerfälle von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen im den Ort der Probenahme umgebenden Boden,
- Terrestrische Strahlung durch Zerfälle von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen in dem Probenmaterial selbst und
- kosmische Strahlung.

Zur Erfassung der Komponenten stehen α -Zählung oder α -Spektrometrie, β -Zählung, γ -spektrometrische Messungen sowie umfangreiche Tabellenwerte für den Beitrag der kosmischen Komponente in Abhängigkeit der geographischen Breite und der Höhe über dem Meeresspiegel zur Verfügung.

Wenn die gesamte dem Probenmaterial aufgeprägte Dosis D_{gesamt} mit der Messmethode der PPSL bestimmt wird, sodass $D_{gesamt} = D_{PPSL}$, so ergibt sich die Unfalldosis durch:

$$D_{Unfall} = D_{PPSL} - A \cdot (\dot{D}_\alpha + \dot{D}_\beta + \dot{D}_\gamma + \dot{D}_{kosm.}), \quad [17]$$

wobei:

- A : Alter der Probe
- \dot{D}_α : Dosisleistung aufgrund α -Zerfälle von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen innerhalb der Probe
- \dot{D}_β : Dosisleistung aufgrund β -Zerfälle innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen und durch Zerfall von ^{40}K
- \dot{D}_γ : Dosisleistung aufgrund γ -Zerfälle natürlicher Radionuklide innerhalb der Probe sowie durch γ -Zerfälle natürlicher Radionuklide Zerfallsreihen im den Ort der Probenahme umgebenden Boden
- $\dot{D}_{kosm.}$: Dosisleistung aufgrund der Höhenstrahlung.

Zur Bestimmung der Altersdosis sind somit eine Vielzahl von Messungen nötig. Sie machen die Bestimmung sowohl apparativ als auch in Hinsicht auf die nötigen Laborarbeiten aufwändig. Alle sind mit einer eigenen spezifischen Messunsicherheit behaftet (siehe Kap. 6.1.3), wodurch aufgrund des Zusammenwirkens aller Messunsicherheiten die Gesamtunsicherheit bei Bestimmung der Altersdosis groß ist. Aus diesen Gründen ist es wünschenswert, wenn diese Vielfalt von Messungen durch eine oder wenige ersetzt werden könnte.

Unter der Voraussetzung, dass die Nachweisgrenze bei der Messung der Lumineszenz sehr niedrig ist, ist es denkbar, das Probenmaterial selbst zur Bestimmung der Altersdosis zu verwenden. Bei dem dazu nötigen Verfahren muss das Signal einer Probe nullgesetzt werden, ohne die Probe in ihrer Form zu ändern. Bei Keramik ist dies durch Aufheizen der Probe möglich. Wenn man bei diesem Heizvorgang unter der ursprünglichen Brenntemperatur bleibt, ist nicht zu befürchten, dass sich die Eigenschaften des Materials ändern. Nach Heizen der Probe würde man die Probe wieder an ihren Probenort zurückbringen, d.h. einen Ziegel beispielsweise wieder in die Wand, aus der er stammt, einpassen. Bei einer typischen Jahresdosisleistung von 2,5mGy bis 5mGy [BAILIFF, 1997], werden innerhalb

weniger Monate Dosen in der Größenordnung von etwa 1mGy akkumuliert. Wenn die Nachweisgrenze eines Verfahrens mithin in diesem Bereich liegt, kann die oben festgestellte Vielzahl von Verfahren durch ein einziges ausgetauscht werden. Dabei würde sich die nötige Zeitdauer für die Durchführung einer Dosisrekonstruktion um die notwendige Lagerdauer des Probenmaterials erhöhen, der apparative Aufwand aber erheblich senken.

3. Grobkeramische Baustoffe: Bestandteile und Produktion

3.1 Definitionen

Unter Keramik versteht man „die Technik und Wissenschaft der Herstellung nichtmetallisch-anorganischer Werkstoffe“ [BROCKHAUS BAND 11, 1984]. Diese Materialien sind in tonige und nicht-tonige Werkstoffe zu untergliedern; im Weiteren sollen nur die tonigen betrachtet werden. Das Rohmaterial toniger Werkstoffe besteht dabei weitestgehend aus Kaolin oder Ton. Kaolin ist ein Verwitterungsprodukt des Feldspats, es handelt sich dabei um ein in der Natur sehr rein auftretendes Aluminiumsilikat ($\text{Al}_2[\text{Si}_2\text{O}_5](\text{OH})_4$) mit Korngrößen $< 2\mu\text{m}$. Der Begriff Ton bezeichnet in der Bodenkunde eine Korngröße¹³. In dieser Korngröße treten bestimmte Minerale bevorzugt auf; dies sind die sog. Tonminerale (z.B. Illit, Montmorillonit).

Die tonige oder Tonkeramik wird in Grob- und Feinkeramik gegliedert. Die Wortbestandteile „grob“ und „fein“ beziehen sich dabei auf die Korngrößenverteilung im Rohmaterial. Bei einer maximalen Korngröße von $100\mu\text{m}$ spricht man von Feinkeramik [TECHNISCHE KERAMIK, 1999]. Dies bedeutet zumindest für die Grobkeramik, dass das Rohmaterial zusätzlich zu den Tonmineralen noch weiteres Korn in der Korngröße „Sand“ beinhaltet. Dieses ist entweder bereits im Rohstoff vorhanden oder es wird zugemischt.

Die Korngrößenverteilung des Rohmaterials hat wesentlichen Einfluss auf die Brenntemperatur und die Eigenschaften des gebrannten Scherbens, die ihrerseits die jeweilige Produktpalette definieren:

Feinkeramische Produkte werden oberhalb der Sintergrenze (ca. 1400°C) gebrannt, da andernfalls kein stabiles Produkt zu erzeugen ist. Diese hohen Brenntemperaturen führen

¹³ In der Bodenkunde werden die Mineralkörner der Böden nach der Korngröße in Ton, Schluff (= Silt) und Sand eingeteilt [BROCKHAUS BAND 11, 1984]:

- Ton: $< 2\mu\text{m}$
- Schluff: $2\mu\text{m} \dots 63\mu\text{m}$
- Sand: $> 63\mu\text{m}$

zum Auf- und Verschmelzen der Körner und daher zu einem sehr dichten und wenig oder nicht wassersaugenden Scherben. Beim Brand kann das Material durch chemische Prozesse schwinden, sodass nur kleine oder dünnwandige Produkte (z.B Geschirr aus Porzellan) aus Feinkeramik gefertigt werden.

Grobkeramische Produkte werden unterhalb der Sintergrenze gebrannt (in der Regel bei 900°C··1000°C). Durch den Gehalt an größerem Korn ist auch bei diesen Temperaturen ein stabiles Produkt erzeugbar. Beim Brand verbackt lediglich der feinste Tonanteil sowie die Oberflächen der Körner; das einzelne Korn des Ausgangsmaterials ist auch im Endprodukt noch enthalten. Der erzeugte Scherben ist porös und daher wassersaugend. Er schwindet aber - je nach Art des groben Korns - beim Brand nicht oder kaum; es sind daher große, voluminöse Produkte erzeugbar.

In der Baustoffkunde unterscheidet man entsprechend fein- und grobkeramische Baustoffe: zu den grobkeramischen Baustoffen werden Mauer- und Dachziegel, Klinker und Steinzeug für die Kanalisation gezählt, zu den feinkeramischen Porzellan und Fliesen [SCHÄFFLER *et al.*, 2000].

3.2 Rohstoffe

3.2.1 Kleines Ziegelglossar

(aus [RUPP & FRIEDRICH, 1988])

Bildsamkeit...

...beschreibt den Grad, in dem ein angefeuchteter und durchkneteter Ziegelton deformiert werden kann, ohne zu reißen, nachdem er zuvor in definierte Formen gebracht wurde. Tests dieser Eigenschaft bestehen im Formen von Kugeln oder Rollen, die bei zusammendrücken auf die Hälfte ihres Durchmessers nicht rissig werden sollen, oder im Formen von Rollen, deren Durchmesser sich beim Auseinanderziehen bis zum Bruch nicht wesentlich verjüngen sollten. Mit dem Begriff der Bildsamkeit verbindet sich weiter der Begriff der **Standfestigkeit**; er beschreibt die Fähigkeit eines Materials, das einmal in eine bestimmte Form gebracht wurde, diese auch (im ungebrannten Zustand) zu wahren, was technisch während des Trockenvorganges wichtig ist.

Beide Eigenschaften sind verknüpft mit dem Anteil der Tonminerale im Rohmaterial. Tonminerale sind Schichtsilikate, die die Fähigkeit haben durch Einlagerung von Wasser zwischen die Schichten zu quellen (sie zeichnen sich daher durch hohe Wasseraufsaugfähigkeit aus - siehe unten). Durch das eingelagerte Wasser gleiten die einzelnen Minerale gut gegeneinander ab und geben der Gesamtmasse so eine Homogenität, die Rissbildung unterdrückt.

Bindevermögen...

...ist die Fähigkeit eines Rohmaterials eines Tones in angefeuchtetem Zustand weitere grob- oder feinkörnige Materialien in einer Art und Weise aufzunehmen, dass eine homogene Masse entsteht.

Wasseraufsaugfähigkeit...

...beschreibt die Fähigkeit eines trocknen Tones Wasser aufzunehmen.

Wasserabgabefähigkeit...

...beschreibt die Fähigkeit eines feuchten und geformten Tones das Wasser während eines Trockenvorganges gleichmäßig und ohne Rissbildung und Verziehen der Form wieder abzugeben.

Schwindung...

...stellt die Volumenreduktion eines in Form gebrachten Tonproduktes während des Brandes dar.

Fette / Magere Ziegeltonne:

Der Begriff „fett“ bezeichnet Ziegeltonne hoher Bildsamkeit und Bindevermögens. Der Begriff rührt von dem Gefühl her, mit dem sich solch ein Ziegelton anfasst. „Mager“ bezeichnet entsprechend Tone niederer Bildsamkeit und Bindevermögens.

3.2.2 Notwendige Eigenschaften

Für die Ziegelproduktion werden die Rohmaterialien zuerst gut durchmischt und angefeuchtet, sodass homogene Massen entstehen. Im nächsten Prozessschritt werden die Ziegelprodukte geformt, dann getrocknet, wobei das Wasser nun langsam und ohne Rissbildung entweichen soll, bevor der Ziegel gebrannt wird.

Aus diesem Produktionsablauf wird deutlich, dass ein möglichst fetter Ziegelton („fett“ = hohe Bildsamkeit und Bindevormögen) als Rohmaterial wünschenswert ist. Da sich die hohe Bildsamkeit aber auf den Anteil der Tonminerale im Rohmaterial gründet, wird auch deutlich, dass ein zu fetter Ziegelton nicht wünschenswert sein kann, da beim Trocknen das Wasser entweicht und die Schichten der Tonminerale „zusammenfallen“, sodass der Trockenvorgang mit Schwindung einhergeht. Dies wiederum steht der Produktion von Normprodukten, die Ziegeleiprodukte immer sind, im Wege.

Somit wird deutlich, dass sich das ideale Rohmaterial durch eine ausgewogene Zusammensetzung aus bildsamen und unbildsamen Bestandteilen auszeichnet. Um diesem Ideal möglichst nahe zu kommen, werden zu fetten Tonen unbildsame Bestandteile zugesetzt, die in diesem Fall als „Magerungsmittel“ bezeichnet werden.

3.2.3 Bestandteile

3.2.3.1. *Bildsame Bestandteile*

Bei den bildsamen Bestandteilen handelt es sich im Wesentlichen um den Anteil der Tonminerale im Rohmaterial. Diese stellen auch den Großteil des Rohmaterials dar. Nicht nur das Wesen der Tonminerale als Schichtsilikate verleiht der Gesamtmasse die Bildsamkeit, auch die geringe Korngröße.

Ein weiterer bildsamer Anteil beruht auf dem feinen Korn eigentlich unbildsamer Bestandteile wie Quarz und Feldspat (Korngrößen $< 2\mu\text{m}$). Aufgrund der kleinen Korngrößen und der damit verbundenen kleinen Oberflächen verhält sich dieser Anteil bzgl. der Einlagerung bzw. der Wasseraufsaugfähigkeit ähnlich den Tonmineralen.

3.2.3.2. *Unbildsame Bestandteile*

Der unbildsame Bestandteil beruht auf bereits im Rohstoff vorhandene oder künstlich zugegebene Zusätze größerer Korngrößen. Es kann sich hierbei um Minerale handeln, wie z.B. Quarz oder Feldspäte, wovon es wiederum drei Hauptarten gibt („Orthoklas“ KAlSi_3O_8 , „Albit“ $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$, „Anorthit“ $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$), die in der Regel in Mischungen auftreten. Diese Minerale sind meist natürlich im Rohstoff bereits vorhanden. Weiterhin tritt in kleineren Mengen Kalk auf. Dieser ist jedoch nur in Maßen und in sehr feinen Korngrößen erwünscht, da er sich beim Ziegelbrand chemisch umsetzt, wobei Kohlendioxid frei wird, das den Ziegel zu sprengen droht.

Künstlich dagegen wird gemahlener Ziegelbruch zugesetzt, der als gebranntes Material ebenfalls unbildsam ist. Schließlich sind für seltene Ausnahmefälle Quarzite und Magnesite als Zusätze zu nennen. Diese fallen bei der industriellen Produktion von Silika- und Magnesiasteinen an.

3.3 Rohstoffarten

3.3.1 Löss

Löss ist ein weitverbreiteter Bodentyp. Er bedeckt 25% der gesamten kontinentalen Erdoberfläche [ZÖLLER, 2001a]. Es handelt sich in jedem Fall um windvertragenes Material, das an geeigneten Stellen in der Landschaft deponiert wird. Man spricht von „äolischen Sedimenten“. In vielen Fällen ist der eigentliche Ursprung glazial bedingt. In neuerer Zeit hat man auch Wüstenränder als Quellgebiet für Löss entdeckt, in diesen Fällen, etwa südlich der Sahara, spricht man dann von „Wüstenlössen“.

Für die Löss in Mitteleuropa dürften aber in den allermeisten Fällen die letzten Eiszeiten verantwortlich sein. Die Gletscher dieser Eiszeiten haben das Material durch ihre Mahl- und Fließbewegung in den Alpen und in Skandinavien abgetragen und nach Mitteleuropa transportiert. Beim Abschmelzen der Gletscher wurde das Material dann frei und direkt oder nach Transport im Schmelzwasser zu den großen Sanderflächen vor den vergletscherten Gebieten vom Wind verblasen.

Für die Lössbildung sind nun einige Kriterien notwendig:

- a) Es muss ein geeignetes Quellgebiet vorhanden sein. Diese Bedingung war nach dem Abschmelzen der Gletscher sicher gegeben.
- b) Die Möglichkeit der Aufnahme des Materials durch den Wind muss gegeben sein. Dies ist dann möglich, wenn die Landschaft vegetationsarm ist, was in den den Eiszeiten nachfolgenden Kaltzeiten sicher noch der Fall war, im Besonderen in den Zonen unmittelbar vor den Gletschern. Diese Situation ist auch heute noch in Skandinavien beobachtbar [SCHALLER, 2001a].
- c) Es müssen Landschaftsoberflächen vorhanden sein, die sich für die Ablagerung des Materials eignen. Solche Landschaftsformen zeichnen sich durch leichte Hügelformen oder Beckenlagen aus.

Aus diesen Gründen ergeben sich Vorzugsregionen, in denen Löss zu finden ist. In Deutschland sind diese Regionen von Norden nach Süden die nördlichen Randlagen der Mittelgebirge, als Lage entlang des Wiehen- und Rothaargebirges, die westfälische Bucht, Lagen entlang der Börden, das sächsische Vorland des Erzgebirges, vereinzelt Lagen im Erfurter Becken, Lagen im und östlich des Kraichgaus und schließlich die gesamte Region nördlich der Jungmoränenzone an den Alpen bis hin zur Donau, wobei innerhalb dieser Region besondere Vorkommen im Niederbayerischen Tertiärhügelland vorliegen. Keine Lössen treten aber im Bereich der Jung- und Altmoränenzonen (sowohl in Norddeutschland als auch in Süddeutschland) und im Fränkischen Stufenland auf. Lössarm sind zudem viele Regionen in den Mittelgebirgen.

Zum Transport mit dem Wind eignen sich Korngrößen im Korngrößenbereich von einigen μm bis einigen $10\mu\text{m}$ besonders [SCHALLER, 2001b]. Aufgrund dieser Vorauswahl, den Verwitterungsprozessen seit Deposition des Lösses und dem Eintrag von lokal bereits vorhandenem Mineralen, führt dies - in den oben genannten Gebieten zu Lössen mit einer Korngrößenverteilung von unter $1\mu\text{m}$ bis zu ca. $200\mu\text{m}$ mit einem Vorzugsbereich von unter $1\mu\text{m}$ bis hin zu einigen $10\mu\text{m}$.

3.3.2 Auenlehme

Auch Auenlehme kommen als Rohstoff für die Ziegelindustrie in Betracht. Es handelt sich bei ihnen um fluviatile Sedimente, d.h. um Material, das von Wasserläufen transportiert und in Regionen geringerer Fließgeschwindigkeit abgelagert wurde. Aufgrund dieser Deposition liegt auch bei ihnen eine Vorzugsverteilung an Korngrößen vor. In der modernen Ziegelindustrie spielen aber Auenlehme als Rohstoff aufgrund der geringen Mächtigkeiten der Lagerstätten nur noch in Ausnahmefällen eine Rolle. Sie werden daher im Folgenden nicht weiter betrachtet.

3.4 Verwendung und Verbreitung

3.4.1 In der Geschichte

„Der Ziegelstein ist der erste Baustoff, welcher durch die Beherrschung der vier Elemente Erde, Wasser, Luft und Feuer vom menschlichen Intellekt geschaffen wurde.“ (Torroja, 1961) [RUPP & FRIEDRICH, 1988]. Ziegel wurden bereits von Babyloniern und Ägyptern im frühen Altertum verwendet. Auf das Gebiet des heutigen Deutschland kamen sie mit den Römern in der Zeit um die Zeitenwende. Im Mittelalter spielten sie aufgrund der überall vorhandenen Fülle an Holz als Baumaterial eine untergeordnete Rolle. Erst mit dem Bau der Städte in der Zeit der Spätgotik und mit den dann notwendigen Brandschutzmaßnahmen bekamen anorganische Baumaterialien immer größere Bedeutung.

In der Neuzeit spielt die Explosion der Städte während der industriellen Revolution (ab ca. 1830) und in Deutschland im Besonderen in der Gründerzeit nach 1872 die entscheidende Rolle bei der Verbreitung der Ziegel als Baumaterial. Da Ziegel (zumal Mauerziegel im Besonderen hinter Putz, weniger Dachziegel) sehr beständiges Material sind, sind Ziegel aus dieser Zeit in entsprechend alten Gebäuden noch zu finden. Der Ziegeltyp, der damals und noch bis in die Mitte des 20. Jahrhunderts produziert wurde, war der sog. Handstrich(ziegel). Der Name rührt daher, dass bei der Produktion der feuchte Ziegelton in eine Form gepresst und das übrige Material mit einer Klinge mit der Hand abgezogen – „abgestrichen“ – wurde. Bei diesem Ziegeltyp handelt sich um Vollziegel. Sie sind in ihren Anforderungen an das Rohmaterial sehr anspruchslos. Derartig niederqualitatives

Rohmaterial findet sich fast überall in Deutschland. Im Unterschied zu heute war aber der Transport in großen Mengen nur über die Schiene möglich und im Vergleich zu heute sehr teuer. Aus diesem Grund wurde in jener Zeit überall in Deutschland in der Nähe der großen expandierenden Städte in sogenannten Feldziegeleien¹⁴ produziert. Obwohl vermieden wurde, den Rohstoff über größere Distanzen zu transportieren war die Nähe der Eisenbahn dennoch erforderlich, um das fertige Produkt abzutransportieren und die Ziegelöfen mit Kohle zu versorgen.

3.4.2 In der Moderne (nach 1945)

Auch heute ist Ziegel ein überaus beliebtes Baumaterial. Dies gilt im Besonderen, da in vielen ländlichen Gemeinden mit Entfernungen bis zu 100km und mehr zur nächsten Großstadt in den letzten 30 Jahren die Siedlungsgebiete rapid wuchsen und es immer noch tun. Diese Entwicklung ist auf die immer größerer individueller Mobilität zurückzuführen, die es den Leuten ermöglicht, immer weitere Strecken zum Arbeitsplatz zurückzulegen. Diese Entwicklung scheint ungebrochen und wird auch in Zukunft die „Dosimeterdichte“ des Dosimeters Ziegelstein weiter erhöhen.

Der Grund für die Attraktivität des Ziegels als Baumaterial liegt zum Einen in praktischen Gründen, wie seinem relativ niederen Preis, der Möglichkeit, mit ihm individuelle Baulösungen zu erreichen (im Gegensatz dazu Fertighäuser) und seiner hohen Beständigkeit (im Gegensatz dazu Holz als Baumaterial). Zum Anderen liegen aber auch bautechnische Gründe vor: Aufgrund der „gebrochenen“ Struktur einer Ziegelwand, die im Gegensatz zu einer Betonwand nicht aus einem Stück ist und die daher nicht so ohne weiteres in Schwingungen gerät, haben Ziegelgebäude sehr günstige akustische Eigenschaften. Diese können noch durch Verwendung bestimmter Ziegel, sog. Schwerziegel¹⁵, verbessert werden.

¹⁴ Feldziegeleien waren kleine einfach und schnell errichtete Produktionsstätten, die nach Ausbeutung des lokalen Rohstoffen wieder aufgelassen wurden.

¹⁵ Schwerziegel: Vollziegel (d.h. ohne Lochung), deren Dichte durch Zusätze (z.B. Quarzkies) erhöht ist

Ein weiterer Hauptgrund für die Verwendung von Ziegel sind aber seine günstigen Wärme-Eigenschaften: Moderne Mauerziegel sind - mit der Ausnahme von Schwerziegeln - in aller Regel Hohl- oder Lochziegel, d.h. die Ziegel sind bis auf ein stützendes Gittergewebe hohl; der Lochanteil beträgt laut DIN 105 bis zu 55% [NOACK, 1998]. Die Dichte des gebrannten Scherbens wird durch organische Zusätze ins Rohmaterial noch reduziert, da diese beim Ziegelbrand rückstandslos verbrennen. Die erzeugten Hohlräume führen zu Luftpolstern im Ziegel der einen Wärmetransport nach außen stark reduziert und daher eine gute Wärmedämmung darstellt.

All diese Gründe führen zu einem starken Einsatz von Ziegel als Baumaterial insbesondere beim individuellen Wohnungs- und Hausbau.

3.4.3 Verteilung der Ziegeleidichte über Deutschland

Der moderne Mauerziegel wie auch Dachziegel stellen einen im Vergleich zu früheren Anforderungen hohen Anspruch an das Rohmaterial und dessen Verarbeitung. Diesem Anspruch können Feldziegeleien (vgl. Kap. 3.4.1) heute nicht mehr genügen. Ähnlich wie früher ist der Ziegel immer noch ein vergleichsweise billiges Baumaterial. Um wirtschaftlich produzieren zu können, liegen moderne Ziegeleien daher nahe an möglichst hochwertigen Rohstoffvorkommen. Solche liegen wie in Kap. 3.3.1 dargelegt häufig in Regionen großer Lössvorkommen. Die Verteilung der Ziegeleien spiegelt sich daher in Deutschland in der Lösskartierung.

3.4.4 Konsequenzen für den regionale Verbreitung von Ziegeln in Deutschland

Aufgrund des billigen Preises von Ziegeln liegt es im Interesse von Bauherrn und Ziegelproduzenten, das fertige Produkt nicht über die Maßen weit transportieren zu müssen. Es ergibt sich somit als Konsequenz, dass in Regionen hoher Ziegeleidichte man mit Fug und Recht annehmen kann, dass das Rohmaterial der Ziegel eines beliebigen Gebäudes regional abgebaut wurde.

In Regionen allerdings geringer Ziegeleidichte ist ein Rückschluss, von wo das Rohmaterial der Ziegel eines Ziegelgebäudes stammt, in der Regel nicht möglich. Wenn das

Baumaterial bei einem Hausbau ohnehin über eine große Distanz angeliefert werden muss, ist es für den Bauherrn gleichbedeutend, aus welcher Himmelsrichtung. Und da Ziegel sowohl in ihren Eigenschaften, als auch in ihren Formaten DIN-Normen unterliegen, geht die Information, von welcher Ziegelei das Baumaterial stammt meist nach Fertigstellung des Hauses sofort verloren.

3.5 Konsequenzen für die Dosisrekonstruktion mittels PPSL

Aufgrund der weiten Verbreitung von Ziegeln als Baumaterial zeigt sich dieses Material als geeignetes Material für die Dosisrekonstruktion in der Unfalldosimetrie. Wie in Kap. 3.4 gezeigt werden konnte, ist aufgrund der Art der Verwendung des Materials im Allgemeinen anzunehmen, dass in der Regel Ziegel Verwendung finden, deren Rohstoff lokal gewonnen wurde. Dies gilt auf jeden Fall für ältere Gebäude (Gebäude gebaut vor 1945); für jüngere Gebäude (Gebäude gebaut seit 1945) ist dies aufgrund der verbesserten Transportmöglichkeiten zumindest für Regionen anzunehmen, in denen Rohmaterialien in größerer Menge abgebaut werden. Diese Regionen wurden in der Einleitung als „ziegeltechnisch geschlossene Regionen“ definiert.

Wie im Kap. 3.3.1 gezeigt werden konnte, werden äolische Sedimente aus einem bestimmten Quellgebiet bevorzugt in einer bestimmten Zielregion abgelagert, um dort Lössböden aufzubauen. Der Umkehrschluss, Löss aus einer Region würden auch aus einem Quellgebiet stammen ist nicht unbedingt zulässig. Die Lössforschung steht dies bezüglich noch am Anfang. Eine direkte Zuordnung von Quellgebieten zu entsprechenden Lössregionen wurde zwar versucht, konnte aber nur in wenigen Fällen festgestellt werden. Dennoch darf zumindest für den mitteleuropäischen Zusammenhang angenommen werden, dass lössreiche Regionen bevorzugte Quellgebiete besitzen, die in der entgegengesetzten Richtung der lokal vorherrschenden Windrichtung liegen [ZÖLLER, 2001b]. Eine entsprechende Ähnlichkeit der mineralischen Zusammensetzung innerhalb einer Lössregion zu erwarten, liegt nahe.

Aus Sicht der Untersuchung der Eigenschaften von Ziegeln aus einer ziegeleireichen und insofern lössreichen Region mit Lumineszenzmethoden, die ja, wie in Kap. 2 dargelegt, von der mineralischen Zusammensetzung einer Probe abhängen, ist somit zu

erwarten, dass sich Ziegel aus einer Region gleich verhalten. Auch dies galt es in der vorliegenden Arbeit zu untersuchen.

4. Material und Methode

4.1 Messprogramm

Aus dem Wissen um den Stand der Techniken in der retrospektiven Dosimetrie und dem daher rührenden Wunsch, Möglichkeiten zur Senkung der Nachweisgrenze zu finden, sollte nun geprüft werden, ob sich die PPSL-Methode für die retrospektive Dosimetrie eignet. Um dies zu prüfen wurde ein Messprogramm entwickelt, das im Folgenden vorgestellt wird.

Bei dem Gerät, das für diese Messungen verwendet wurde, handelt es sich um das „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“ (im Folgenden abkürzend SURRC-PPSL-Gerät genannt, detaillierte Beschreibung: Kap. 4.3.2).

Die PPSL-Methode wurde bisher überwiegend zur Detektion von Lebensmittelbestrahlungen verwendet. Auch das SURRC-PPSL-Gerät wurde für diese Anwendung entwickelt und wird zu diesem Zweck vertrieben. Die Quelle des Signals bildet nicht das jeweilige Lebensmittel selbst, sondern Minerale, die in Form von Stäuben auf der Oberfläche des Lebensmittels ruhen, z.B. bei Obst oder Pilzen oder Gewürzen. Als solche Minerale kommen – wie bei grobkeramischen Produkten auch – Feldspäte in Betracht. Diese haben allerdings im Gegensatz zur Grobkeramik eine gänzliche andere Vorgeschichte (sie wurden nie erhitzt) und die zu bestimmende Dosis ist erheblich höher. Auch ist in diesem Fall nicht die exakte Höhe der Dosis zu bestimmen, sondern „nur“ eine Entscheidung zu treffen, ob das jeweilige Nahrungsmittel jemals einer Dosis ausgesetzt war oder nicht.

Das im Folgenden beschriebene Messprogramm dient dazu, eine Messvorschrift zu entwickeln, unter deren Verwendung mithilfe des SURRC-PPSL-Gerätes grobkeramischen Produkten applizierte Strahlendosen quantitativ ermittelt werden können. Weiterhin galt es, die Nachweisgrenze der Methode und des Materials festzustellen. Die Messungen stützen sich auf den Feldspatgehalt der Proben, da von diesem die höchste Photonenausbeute je Dosiseneinheit zu erwarten ist.

Schließlich sollten die Messungen dazu dienen, die These, Ziegel aus einem ziegeltechnisch geschlossenem Gebiet verhielten sich gleich, zu prüfen. Die ausgewählten Proben stammen daher vorwiegend von Ziegeln aus *einem* Gebiet, dem niederbayerischen Tertiärhügelland und angrenzenden Gebieten. Zum Vergleich wurden aber noch Proben von Ziegeln aus anderen deutschen Regionen dazu betrachtet, um einen Hinweis darauf zu erhalten, ob sich diese Proben generell anders verhalten oder ob die gefundenen Eigenschaften sich möglicherweise auf alle modernen Ziegel verallgemeinern lassen könnten.

Um dem **ersten Ziel** – der Fortentwicklung der Methode „PPSL“, Anpassung dieser Methode an die Aufgabe „Retrospektive Dosimetrie anhand von grobkeramischen Materialien“ und Optimierung der Messabläufe und der dazugehörigen -parameter (beides zusammen sei im Folgenden „Messesequenz“ genannt) – gerecht zu werden, sind die dosimetrischen Eigenschaften in Bezug auf PPSL unter Variation verschiedener Parameter festzustellen. Die notwendigen Untersuchungen gliedern sich wie folgt:

1. Untersuchung der Möglichkeit von Messwiederholungen:

Für die Feststellung einer Unfalldosis sind in jedem Fall Vergleichsbestrahlungen von Nöten. Diese können über verschiedene Methoden (Multi-Aliquot / Single-Aliquot, vgl. Kap. 2.4.3). durchgeführt werden. Dabei zeigt die Single-Aliquot-Methode gewisse Vorzüge, deren Voraussetzung aber die Möglichkeit der Messwiederholung an derselben Probe ist. Ob die Anwendung von Single-Aliquot-Methoden möglich ist und, falls ja, welche Empfindlichkeitsänderung mit ihr einhergeht, gilt es hier zu eruieren.

2. Feststellung geeigneter Vorheiz-Prozeduren:

Bei der Exposition von Kristallen werden möglicherweise auch Fallen besetzt, deren Energieniveaus sehr nahe dem des Leitungsbandes sind, von denen aus also eine thermische Anregung ins Leitungsband sehr leicht (d.h. bereits bei Raumtemperatur mit im Vergleich zu der Anregung aus anderen, tieferen Energieniveaus mit großer Wahrscheinlichkeit) möglich ist. Das Signal aus diesen Energieniveaus ist somit sehr kurzlebig und stellt eine Quelle von Messunsicherheit dar. Um diesem Beitrag zur Messunsicherheit von vornherein aus dem Weg zu gehen, wird das Signal aus diesen Fallen vor der Messung mit geeigneten

Vorheizprozeduren gelöscht. D.h. die Fallen sind entleert, sodass von diesen kein Signal mehr zu erwarten ist.

3. Untersuchung des messbaren Dosisbereiches, insbesondere seiner unteren Grenze (Nachweisgrenze):

Nachdem durch die Untersuchungen 1–2 die idealen Messparameter festgestellt wurden, sind diese jetzt auf verschiedene Labordosen anzuwenden. Ergebnis dieser Studie ist die Festlegung der Nachweisgrenze für die jeweilige Einzelprobe.

Die Auswertung der Ergebnisse dieser drei Untersuchungen ermöglicht die Festlegung optimaler Messbedingungen und -parameter für die jeweilige Einzelprobe (Untersuchungen 1–2). Zudem wird im Zuge der letzten Untersuchung der messbare Dosisbereich ermittelt (Untersuchungen 3), was den unmittelbaren Vergleich mit anderen Messmethoden ermöglicht. Für die Anwendbarkeit der Methode in einem Ereignisfall ist als weiterer Parameter die thermische Stabilität der Messsignale zu ermitteln:

4. Untersuchung der thermischen Stabilität der Messsignale:

Trotz der Untersuchung auf geeignete Vorheiz-Prozeduren ist noch nicht gewährleistet, dass die Lebenszeit des schließlich untersuchten Signals für die retrospektive Dosimetrie ausreichend ist. Dafür sind detaillierte Untersuchungen der Lebenszeit notwendig.

Als Resultat all dieser Untersuchungen ergibt sich somit die Festlegung einer idealen Messsequenz und deren Eignung für den Ereignisfall.

Um dem **zweiten Ziel** – Prüfung der Vermutung, Ziegel aus einem ziegeltechnisch geschlossenem Gebiet verhielten sich gleich – nachzukommen, sind die dosimetrischen Eigenschaften für alle Proben einzeln zu bestimmen und die Ergebnisse dieser Messungen zu vergleichen. Dies bedeutet, dass sämtliche oben beschriebene Messungen für alle Proben durchzuführen sind.

4.2 Proben

Bei dem Probenmaterial handelt es sich in allen Fällen um moderne Mauerziegel, die in allen Fällen unmittelbar von den Ziegeleien bezogen wurden. Dabei wurde darauf geachtet, dass keine Schwerziegel, sondern nur Leichtziegel Verwendung fanden. Der Grund hierfür liegt darin, dass dem Rohmaterial von Schwerziegeln zum Erreichen der geforderten Dichte weiteres Material wie Quarzite zugemengt wird. Dieses Material wird in aller Regel nicht lokal gefördert oder erzeugt. Daher würden Messungen an Schwerziegeln keine Rückschlüsse auf regionale Zusammenhänge zwischen verschiedenen Ziegeln erlauben. Anders die Situation bei Leichtziegeln: Dem Rohmaterial hierfür werden normalerweise keine ortsfremden Zusätze beigemischt, allenfalls Ziegeltone verschiedener, aber lokaler Tongruben gemischt. Dies kann zum Erreichen bestimmter Eigenschaften des Rohmaterials (wie der günstigsten Korngrößen- oder Tonmineralzusammensetzung) notwendig sein. Die Beschränkung auf Leichtziegel ist auch aus dosimetrischer Sicht gerechtfertigt, da Leichtziegel das Gros der in einem Haus verbauten Ziegel ausmachen (Außenmauern, Zimmertrennwände, etc.). Schwerziegel werden üblicherweise zur Trennung der Einzelhäuser in Reihenhäusern oder zur Trennung von Doppelhaushälften aus Schallschutzgründen verwendet und daher in den meisten Ziegeleien ebenfalls produziert.

Die Alter der Ziegel, d.h. die Zeitspanne zwischen Brand und Messung liegen zwischen 3 und 40 Monaten und sind mit einer Unsicherheit von 2 Monaten bekannt.

Insgesamt wurden 9 verschiedene Ziegel unterschiedlicher Ziegeleien untersucht: 6 aus dem niederbayerischen Tertiärhügelland, 2 aus dem Allgäu und einer aus Norddeutschland (aus Peine bei Hannover). Bei insgesamt ca. 15 Ziegeleien im Tertiärhügelland lässt die Untersuchung von 6 verschiedenen die Aussage einer Tendenz zu. Die Untersuchung der beiden Allgäuer Proben und der einen norddeutschen Probe stellen gegenüber den ersten 6 untersuchten Proben Vergleichsmessungen dar.

Die untersuchten Proben sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Tab. 1: Auflistung der Proben

Region	Ziegelei, Ort	Kürzel	Alter / Monaten
Niederbayerisches Tertiärhügel- land	Ziegelei Girnghofer, Marklkofen	GM	40 ± 2
	Ziegelei Hörl & Hartmann, Dachau	HHDI	40 ± 2
	Ziegelei Angerskirchen, Angerskirchen	AK	28 ± 2
	Ziegelei Leipfinger Bader, Buch am Erlbach	LBB	28 ± 2
	Ziegelei Hanrieder, Zolling	Z	28 ± 2
	Bayerische Ziegelunion, Werk Aichach	Aich	3 ± 2
Allgäu	Ziegelei Anton Schmied Marktoberdorf	ASMO	4 ± 2
	Ziegelei Leinsing, Klosterbeuren	KB	4 ± 2
Peine	Ziegelei Keraba, Peine	P	4 ± 2

4.3 Technische Ausstattung

Für die Probenaufbereitung wurden eine Laborwaage, eine Analysenwaage für Wiegen im mg-Bereich, ein Schraubstock, ein Ultraschallbad sowie eine Zentrifuge benötigt. Zudem erfordert die Probenaufbereitung den Einsatz von Aceton, Salzsäure (25%) und Natrium-Polywolframat.

Für Probenvorbehandlung wird ein Muffelofen mit der Möglichkeit Voreinstellung von Temperaturen zwischen 160°C und 450°C. benötigt.

Für die Lumineszenz-Messungen fanden zwei Messgeräte Anwendung: für TL- und für eine Reihe von PSL-Messungen im Rahmen der Vorversuche wurde das Gerät „TL/OSL-DA 12“ der Fa. Risø National Laboratories in Roskilde, Dänemark, verwendet; für die

PPSL-Messungen das Gerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“ der Fa. Technical Instruments Limited in Ruislip, Großbritannien.

4.3.1 Das Gerät TL/OSL-DA 12 (Risø)

Das verwendete TL-Messgerät (Abb. 16) verfügt über einen Satz infrarot strahlender LEDs (Light Emitting Diodes) für PSL-Messungen und über eine Heizvorrichtung für TL-Messungen. Zudem besitzt das Gerät für das Applizieren von Dosen im Dosisbereich ab 0,5Gy (für Vergleichsbestrahlungen, siehe Kap. 2.4) eine ^{90}Sr -Quelle als Bestrahlungseinrichtung und ist darüber hinaus mit einem Sekundärelektronenvervielfacher zur Detektion, dem dazugehörigen Verstärker und einem Probenwechsler, auf dem 24 Proben Platz finden, ausgestattet. An dem eigentlichen Messgerät sind noch eine Einheit, die die Elektronik zur Steuerung der Messapparatur beinhaltet, eine Vakuumpumpe und eine Stickstoffversorgung mit Durchflussmesser, wobei die beiden letzteren gewährleisten, dass sämtliche Messungen unter Stickstoffatmosphäre stattfinden, und ein Rechner zur Ansteuerung und Auswertung angeschlossen. Die Apparatur verfügt des Weiteren über einen Filterhalter für den Einsatz verschiedener optischer Filter.

Eine Steuer- und Auswertesoftware, mit der sowohl Bestrahlungs-, Heiz- und Messvorgänge voreingestellt, als auch die sich ergebenden Glowkurven (vgl. Kap. 2.3.1) nach der Messung ausgegeben und weiterverarbeitet werden können, vervollständigt die Apparatur.

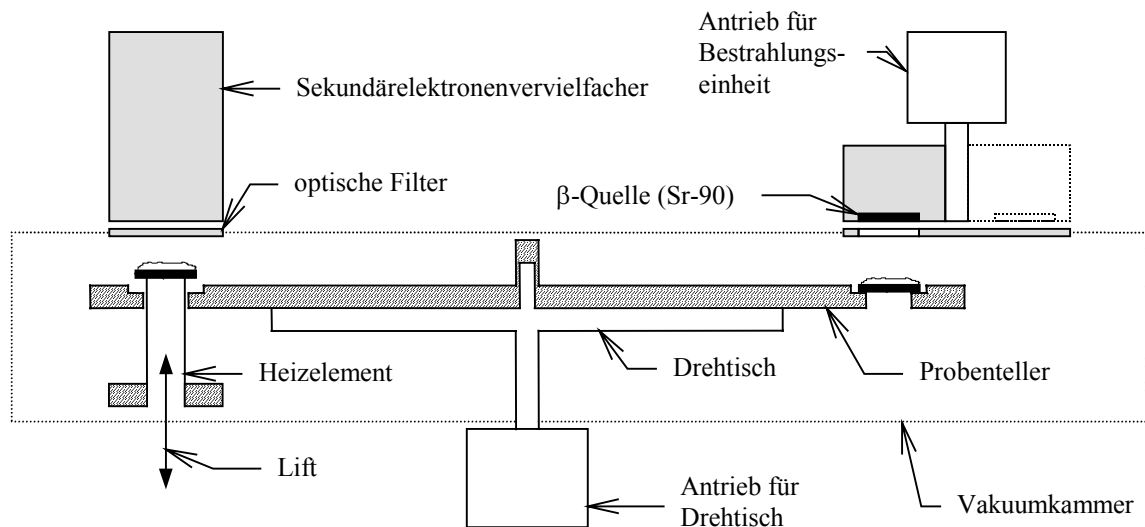


Abb. 16: Das TL/PSL-Messgerät „RISØ TL-DA-12“

4.3.1.1. Infrarot-Dioden zur Stimulation

Die Infrarot-Dioden sind in einem Kreis um die Messposition angeordnet. Ein Satz von 13 Dioden gewährleistet auf den Probenträgern von 0,98cm Durchmesser eine sehr hohe und sehr homogene Beleuchtungsleistung. Bei den Infrarot-Dioden handelt es sich um Dioden des Typs TSHA 6203 der Fa. Telefunken. Es handelt sich dabei um monochromatische Strahler mit einem Maximum an Strahlungsleistung bei einer Wellenlänge von 875nm (1,41eV). Der Wellenlängenbereich, in dem insgesamt abgestrahlt wird, reicht von etwa 800nm bis 960nm (1,3eV bis 1,55eV).

4.3.1.2. Heizvorrichtung

Um die zum Aufnehmen der Glowkurve nötigen Heizvorgänge zu ermöglichen, ist in das Messgerät eine automatisierte Heizvorrichtung eingebaut. Zum besseren Kontakt und um eine konstante Heizrate garantieren zu können, ist die Heizvorrichtung so konstruiert, dass während der Messung das Probenplättchen mit der Probe direkt auf dem Heizelement aufliegt. Es können Heizraten bis zu 35°C/s eingestellt werden; die maximal erreichbare Temperatur beträgt 700°C.

Darüber hinaus kann die Probe vorgeheizt werden, um das Signal von Elektronen in instabilen Fallen bereits vor dem Messvorgang zu löschen. Diese Vorbehandlung wird dadurch erzielt, dass der automatisierte Aufheizvorgang an einer zuvor eingestellten Temperaturmarke unterbricht und für eine ebenfalls zuvor einstellbare Zeit diese Temperatur gehalten wird. Dadurch wird die Gefahr einer Fehlinterpretation des Messergebnisses reduziert.

4.3.1.3. Interne Bestrahlungseinrichtung

Bei der ^{90}Sr -Quelle des Messgerätes handelt es sich um einen reinen β -Stahler, der mit einer Halbwertszeit von 6 Stunden in ^{90}Y zerfällt, das seinerseits mit einer Halbwertszeit von 29 Jahren zerfällt.

Die eingesetzte Quelle (Fa. Amersham) hat eine zylindrische Geometrie (Durchmesser 18,2mm, Höhe 6mm). Bei Auslieferung am 04. Januar 1996 verfügte sie über eine Aktivität von 1,4GBq.

Die Wahl für einen reinen β -Strahler erfolgte von seiten des Herstellers allein aus Gründen des Strahlenschutzes.

Zu bestrahlende Probe und β -Quelle werden mittels zweier getrennter Motoren in Bestrahlungsposition gebracht. Für die Bestrahlung können Zeiten von 1s bis 9999s gewählt werden.

4.3.1.4. Filter

Zum Schutz des Sekundärelektronenvervielfachers vor einem zu hohem Photonenfluß sowie vor der Wärme, die durch das Heizelement erzeugt wird (vgl Abb. 16), ist das TL-Messgerät zusätzlich mit einem Filterhalter ausgestattet, der - je nach Probenmaterial und Anwendung - den Einsatz geeigneter Filter zulässt.

Bei allen Messungen, die in dieser Arbeit durchgeführt wurden, wurde der Filter „BG38“ (Stärke 4mm) der Firma Schott zur Reduktion des optischen Spektrums und der Filter „HA3-1“ der Fa. Shimadzu Corporation zur Unterdrückung des Glüheffektes verwendet. Der Filter BG38 zeichnet sich durch eine schmalbandige Transmittanz von ca.

75% - 80% im Wellenlängenbereich von 300nm - 350nm aus [RISØ, 1994] und ist damit optimal für die Detektion von Quarz. Der Filter HA3-1 transmittiert breitbandig mit 85% - 90% im Wellenlängenbereich von 300nm - 650nm [RISØ, 1994]. Die Transmissionspektren sind in Abb. 17 und Abb. 18 dargestellt.

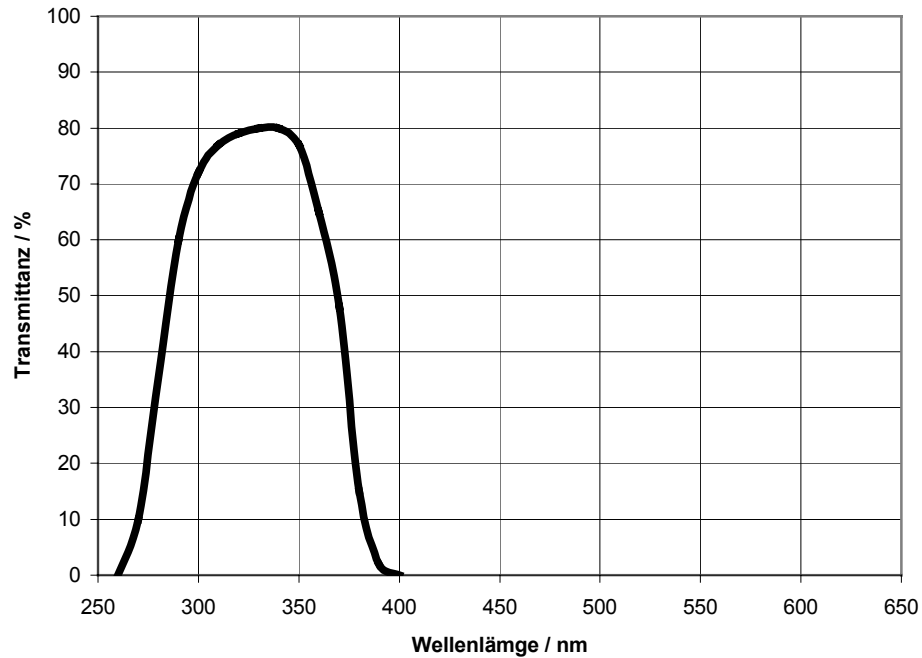


Abb. 17: Transmission des Filters BG38

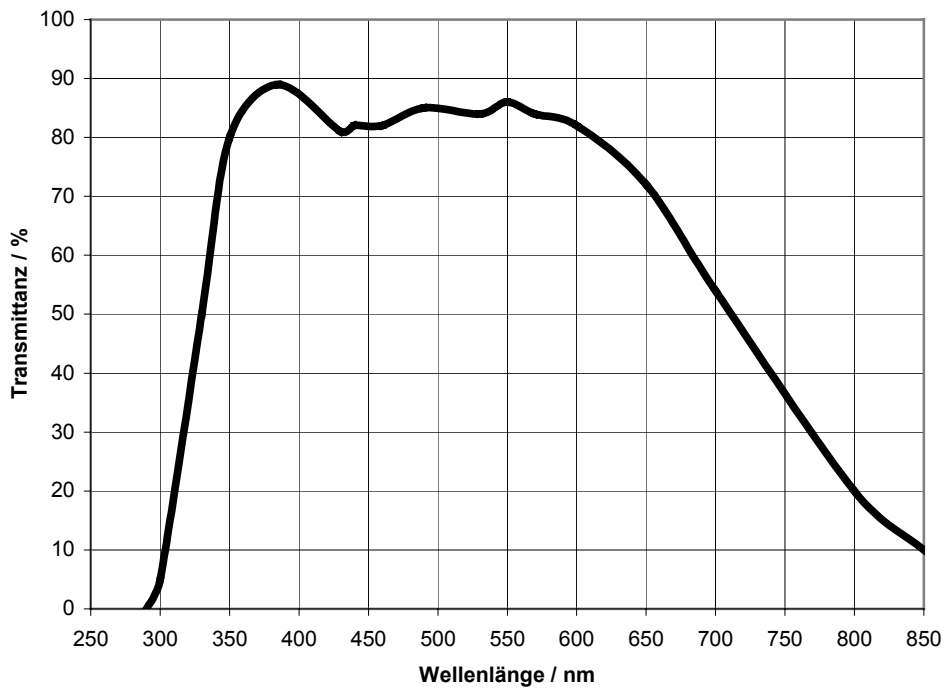


Abb. 18: Transmission des Filters HA3-1

4.3.1.5. Sekundärelektronenvervielfacher

Bei dem zum Nachweis der Photonen verwendeten Sekundärelektronenvervielfachers handelt es sich um ein Gerät des Typs EMI 9236QA der Fa. Products for Research [Risø, 1994]. Die zu seinem Betrieb nötige Hochspannung kann über ein Potentiometer reguliert werden. Bei allen hier beschriebenen Messungen wurde eine Spannung von 1kV angelegt. Die spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers ist in Abb. 19 dargestellt.

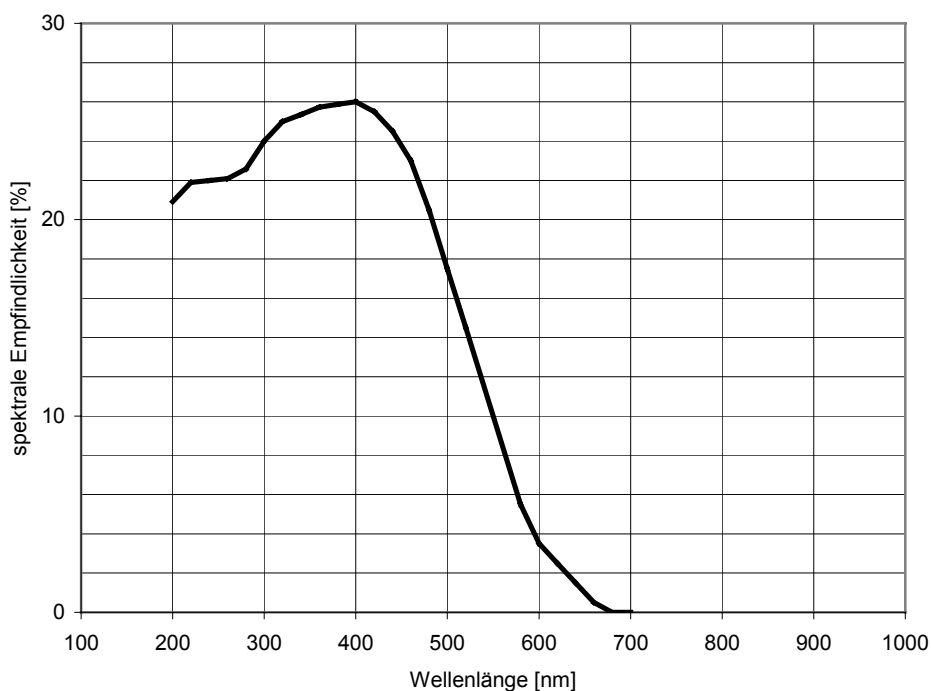


Abb. 19: Spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers (Hersteller: „Products for Research“, Modell 9325)

4.3.1.6. Auswerteeinrichtung

Die von dem Detektor nachgewiesenen Signale werden - zusammen mit der Information der Heizvorrichtung über die jeweilige Temperatur zum Zeitpunkt der Registrierung des Signals - an einen Rechner weitergeleitet, der, ausgestattet mit der Software von Risø National Laboratories („TL-OSL“, MT Software 1994, Version 4.65), eine Darstellung der Glowkurve erzeugt. Mit Hilfe der Software von Risø National Laboratories lässt sie sich

dann je nach Anwendung weiterverarbeiten (z.B. Integration über bestimmte Temperaturbereiche, Untergrundberechnungen).

4.3.2 Das Gerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“ („SURRC-PPSL-Gerät“)

Die Funktionsweise des SURRC-PPSL-Gerätes (Abb. 20) basiert generell auf denselben physikalische Prinzipien wie die des Gerätes TL/OSL-DA 12 (Risø). Im Fall des Gerätes TL/OSL-DA 12 (Risø) besteht aber für PSL-Messungen stets die Schwierigkeit der Untergrundbestimmung: Die Auswerteeinrichtung gibt die Ausleuchtcurve wie gemessen wieder, d.h. einschließlich des Messuntergrundes. Diesen zu bestimmen, ist es aus den in Kap. 2.3.2 und 2.3.4 erläuterten Gründen schwierig. Dieses Problem wird besonders bei sehr niederen Signalen eklatant.

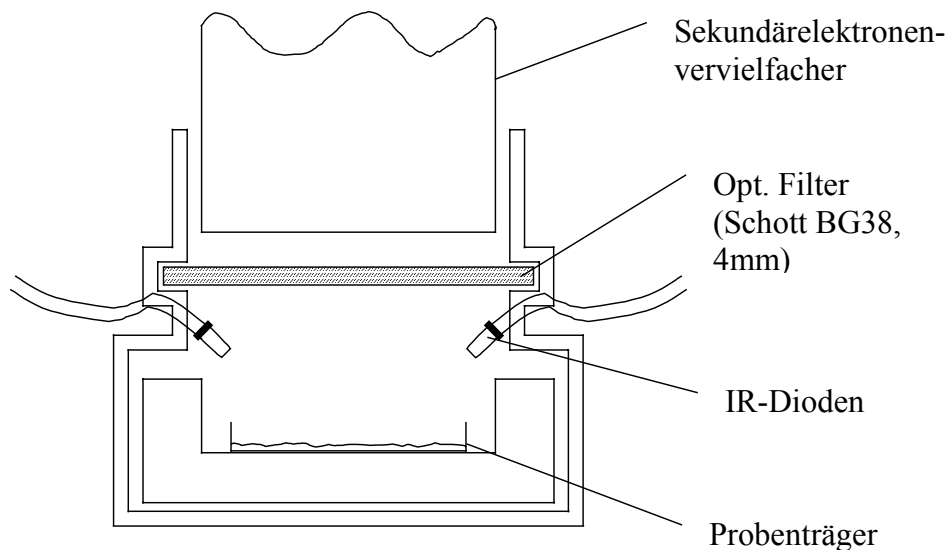


Abb. 20: Das SURRC-PPSL-Messgerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“

Durch die Art der elektronischen Aufarbeitung des gemessenen Signals wird bei dem SURRC-PPSL-Gerät das Problem der Untergrundbestimmung erleichtert. Dies ist ein entscheidender Vorzug und macht die Messung sehr kleiner Dosen erst möglich. Als

Nachteil für Anwendungen in der Dosimetrie ist allerdings die Unmöglichkeit der Vorprogrammierung und Messung von mehreren Proben zu nennen.

4.3.2.1. Infrarote Dioden zur Stimulation

Bei dem SURRC-PSSL-Gerät steht ein Satz von 3 Dioden mit einem dafür jeweils größerem Beleuchtungsfeld zu Verfügung. Die Dioden sind an drei Positionen im Winkel von 120° um die Probe angeordnet und gewährleisten so wie im Fall des Gerätes TL/OSL-DA 12 (Risø) eine homogene Beleuchtung der Probe. Bei den Infrarot-Dioden handelt es sich um Dioden des Typs TSUS5402 der Fa. Telefunken. Das Maximum an Strahlungsleistung liegt bei einer Wellenlänge von 950nm. Der Wellenlängenbereich, in dem insgesamt abgestrahlt wird, reicht von etwa 900nm bis 1000nm.

4.3.2.2. Filter

Zur Trennung von Stimulations- und emittierten Photonen ist der Filter „BG38“ (Stärke 4mm) der Firma Schott fest in das Gerät eingebaut. (Transmission: vgl. Abb. 17)

4.3.2.3. Sekundärelektronenvervielfacher

Bei dem zum Nachweis der Photonen verwendeten Sekundärelektronenvervielfacher handelt es sich um ein Gerät des Typs 9829B18 der Fa. Electron Tubes Limited. Die spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers ist in Abb. 21 dargestellt.

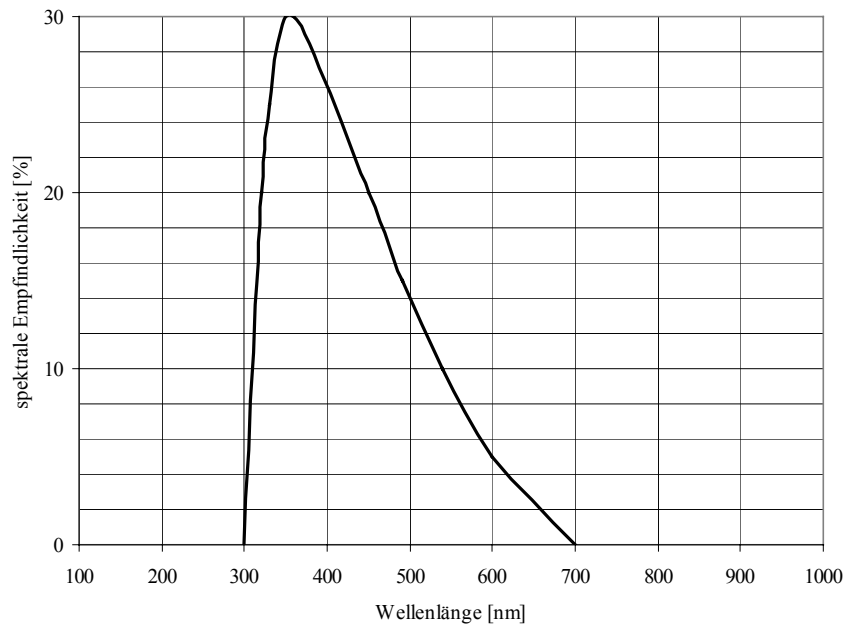


Abb. 21: Spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers (Hersteller: „Electron Tubes Limited“, Modell 9829B18)

4.3.2.4. Auswerteeinrichtung

In der Auswerteeinrichtung liegt die Besonderheit dieses Messgerätes: Während einer vom Anwender voreinstellbaren Zeitspanne Δt_0 werden die von der Probe emittierten Photonen mittels des Sekundärelektronenvervielfachers registriert. Während eben dieser Zeit liegt gepulste Stimulation der Probe vor, d.h. die Infrarot-Dioden stimulieren in Pulsen der Dauer $15\mu\text{s}$, während der darauf folgenden $15\mu\text{s}$ dagegen erfolgt keine Stimulation (vgl. Kap. 2.3.4.1). Es wechseln somit Phasen, in denen eine Probe stimuliert wird und somit dosisabhängig Photonen abgibt, mit stimulationsfreien Phasen, in denen lediglich Untergrundsignale wahrgenommen werden.

Gekoppelt mit der Pulsung des Stimationslichtes ist ein Umschalter, der die Richtung des Photonenzählers, der die vom Sekundärelektronenvervielfachers registrierten Photonen aufnimmt, vorgibt: Während der Phase der Stimulation wird die Zahl der registrierten Photonen aufsteigend gezählt, während der darauffolgenden Phase ohne Stimulation absteigend. Durch diese elektronische Verfahrensweise, werden während der Phase der Stimulation wie beim Gerät TL/OSL-DA 12 (Risø) das Gesamtsignal (= dosisabhängiges

Signal + elektronischer Untergrund) gemessen, während der darauf folgenden Phase aber nur der Untergrund. Durch die Umschaltung wird eine Subtraktion beider Signale bewirkt. Das schließlich ausgegebene Signal nach Ablauf der voreingestellten Zeitspanne Δt_0 ist somit das rein dosisabhängige Signal.

4.4 Probenaufbereitung

Um dem Ziel, möglichst kleine Dosen detektieren zu können, Rechnung zu tragen, ist es unerlässlich, gezielt den signaltragenden Anteil der Probe der Messung zuzuführen; die Anteile der Probe, von denen kein oder nur ein geringes Signal zu erwarten ist, sind nach Möglichkeit abzutrennen.

Da grobkeramisches Material in seiner mineralischen Zusammensetzung sowohl über einen Quarz- als auch über einen Feldspatanteil verfügt (vgl. Kap. 3.2.3.2), dieser aber eine gegenüber dem Quarzanteil sehr viel höhere Lichtausbeute hat (vgl. Kap. 2.3.3), ist für den Fall von Ziegelproben zu erwarten, dass das Signal vom grobkörnigen Feldspatanteil herrührt, und somit dieser für die vorliegende Aufgabenstellung aus einer Gesamtprobe herauszulösen. Dazu wird die Probe zunächst mechanisch bis auf Korngröße zerkleinert. In einem nächsten Arbeitsschritt gilt es, in dem nun gewonnenen Ziegelbruch den geeigneten Korngrößenanteil an Feldspat anzureichern. Schließlich muss die gewonnene Messprobe auf die Probenträger aufgebracht werden.

Die einzelnen Arbeitsschritte werden im Folgenden vorgestellt.

4.4.1 Zerkleinern der Proben

Das Zerkleinern der Ziegelprobe erfolgt mechanisch. Dazu wurde ein zylindrischer Topf aus Stahl und dessen inverses Gegenstück, ein zylindrischer Kolben, der genau in den Topf passt, verwendet (Abb. 22). Größere Ziegelscherben wurden in den Topf gegeben und mithilfe des Anpressens des Kolben mittels eines Schraubstockes zerquetscht. Der Scherben bricht aufgrund von Scherkräften. Dieser Vorgang ist mehrmals zu wiederholen, wobei der Ziegel in immer kleinere Teilstücke zerbricht. Es muss dabei ein Ziel sein, die ursprüngliche Körnung möglichst wiederzugewinnen. Es sollen einerseits keine

Agglomerate (mehrere noch verbackene Körner zusammen) erhalten bleiben, da dabei wieder nur ein Teil des Agglomerats Feldspat sein wird. Andererseits ist es zu vermeiden, dass ursprüngliche Körner in noch kleiner Einheiten zerbrechen, da sich bei Bestrahlung ein Gradient der Dosis über das Volumen eines Kornes ausbildet und dieser Gradient bei der Bestrahlung mit den Vergleichsdosen wieder herzustellen ist. In der Vergangenheit wurde das durch Brechen und Sieben gewonnene Korn schließlich mit den Augen geprüft und das Korn, das vom Experimentator für geeignet gehalten wurde per Pinzette herausortiert [AITKEN, 1985]. Dies ist sehr aufwändig und unterliegt zudem dem individuellen Einfluss des Experimentators (Sehschärfe, Tagesform). Ein derartiges Vorgehen steht einer raschen und standardisierten Dosisermittlung im Weg. Daher wurde in der vorliegenden Arbeit ein alternatives Vorgehen zur Probenaufbereitung untersucht.

Dazu wurde jeweils damit begonnen, das Probenmaterial zu brechen und den Anteil der Körnung $<45\mu\text{m}$ herauszusieben. Dieser Schritt wurde mehrere Male wiederholt, wie oft hing von der Größe des Brechwiderstandes, d.h. von der Härte der Probe ab. Als Ausgangsmaterial wurden in der Regel Scherbenstücke von 50g bis 65g verwendet. Es ist dabei wichtig, diesen Prozess nicht zu früh abzubrechen, da ansonsten im verbleibenden Material zu viel Kornaggregate vorliegen (Kornaggregate: Körner $>45\mu\text{m}$, die aber immer noch verbackenes Material aus ursprünglichen Korn $<45\mu\text{m}$ darstellen). Andererseits darf er aber auch nicht zu oft durchgeführt werden, da man in diesem Fall Gefahr läuft, ursprüngliche Körner auseinander zu brechen. Sowohl aus eigener Erfahrung, als auch unterstützt durch die - heute noch geltenden und angewandten - Forderungen von Winkler an das Rohmaterial für die Ziegelindustrie [WINKLER, 1953]¹⁶, wurde der Prozess in jedem Fall solange fortgesetzt, bis etwa ein Drittel des Ausgangsmaterials in einer Körnung $<45\mu\text{m}$ vorlag.

In einem weiteren Schritt wurde das verbleibende Probenmaterial solange gebrochen, bis es komplett Korngrößen $<250\mu\text{m}$ aufwies. Dies ist ausschließlich für moderne Ziegel gerechtfertigt, da es dem Anspruch an das Rohmaterial der Ziegeleien entspricht. Wie ein Aufschnitt der Proben zeigte, ist dieser Schritt auch in den meisten Fällen gerechtfertigt. In Einzelfällen wird bei dieser Verfahrensweise allerdings billigend in Kauf genommen, dass gröberes Korn in kleinere Stücke zerbrochen wird.

Wenn dies erreicht war, wurde der gesamte Probenanteil $>45\mu\text{m}$ durch Sieben in die Anteile $45\mu\text{m} - 125\mu\text{m}$ und $125\mu\text{m} - 250\mu\text{m}$ aufgeteilt, da gemäß den Arbeiten von Wintle [WINTLE, 1997], der für die weitere Probenaufbereitung günstigste Teil der Anteil $125\mu\text{m} - 250\mu\text{m}$ ist. Mit diesem verbleiben etwa 10g der Probe, d.h. ca. 20% des Ausgangsmaterials.

Bei dem Brechen der Proben wurde darauf geachtet, dass die jeweilige Probe möglichst wenig gerieben wurde, um evtl. auftretende Effekte von Tribolumineszenz¹⁷ zu vermeiden.

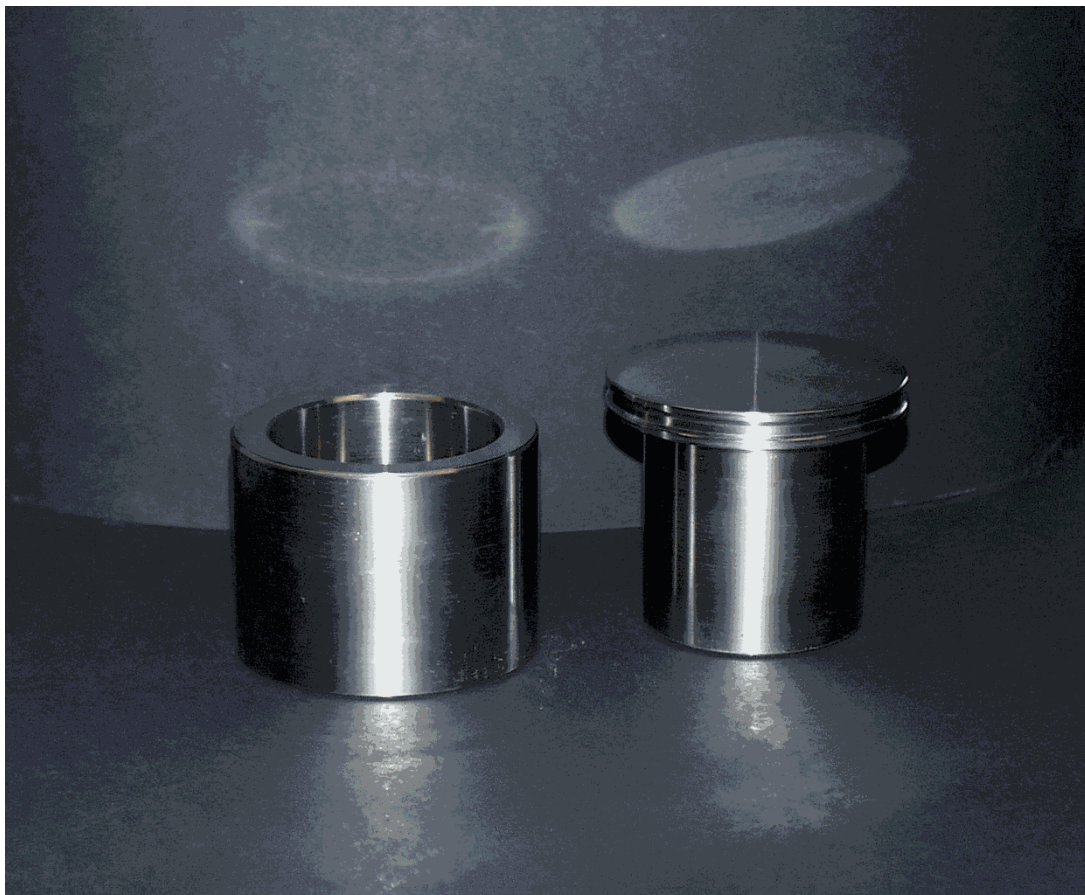


Abb. 22: Vorrichtung zur mechanischen Zerkleinerung des Probenmaterials

¹⁶ Nach Winkler zeigt Rohmaterial für die Ziegelproduktion bei bestimmten Korngrößenverteilungen optimale Eigenschaften; die geforderten Korngrößenverteilungen beinhalten einen Anteil von 40% bis 100% für Körner $< 20\mu\text{m}$ [WINKLER, 1953].

¹⁷ Bei der Tribolumineszenz handelt es sich um eine Form der Lumineszenz, deren Ursprung in der mechanischen Bearbeitung des Werkstückes liegt.

4.4.2 Mineralientrennung

Von nun an wurde lediglich der Probenanteil 125µm - 250µm weiterbearbeitet, da für Korngrößen <90µm eine Mineralientrennung nicht möglich und die Fraktion der Korngrößen 90µm - 125µm in sämtlichen Proben nur mit sehr kleiner Ausbeute ersiebt werden konnte. Da sich die Messungen auf den Feldspatanteil der Probe stützt, galt es diesen Anteil anzureichern. Dazu wurde zunächst die Probe von dem Karbonatanteil gereinigt. Dies wurde durch ein kurzes Bad der Probe in konzentrierter Salzsäure (3x wiederholt) und anschließendem Spülen in bidestiliertem Wasser (5x wiederholt). Anschließend wurde die Probe nochmals in Aceton gespült und bei nicht mehr als 50°C im Trockenschrank getrocknet.

Im nächsten Schritt wurde nun mittels Schwerflüssigkeit¹⁸ die Trennung der verschiedenen Minerale nach Dichte durchgeführt. Als Schwerflüssigkeit wurde Natriumpolywolframat verwendet, das sich durch keinerlei Reaktion mit den Mineralen und einer Dichte von 2,81g/cm³ auszeichnet.

Zur Dichtentrennung wurde die Vorschrift von Aitken verwendet [AITKEN, 1986]. Da die Dichten der verschiedenen im Ziegel auftretenden Minerale sehr dicht beieinander liegen, kann kein Mineral rein gewonnen werden, sondern lediglich sein Anteil angereichert werden. In der vorliegenden Arbeit sollte der Feldspatanteil angereichert werden. Feldspat tritt aber (vgl. Kap. 3.2.3.2) in verschiedenen Varietäten auf, im Besonderen Orthoklas (KAlSi₃O₈) und Albit (NaAlSi₃O₈). Beide unterscheiden sich geringfügig in ihrer Dichte (Orthoklas: 2,55g/cm³; Albit: 2,6g/cm³ ... 2,8g/cm³) Orthoklas zeichnet sich durch seinen Kaliumgehalt durch eine natürlich erhöhte interne Dosisleistung aufgrund des damit verbundenen ⁴⁰K-Gehaltes aus. Die Feldspäte zumal in den bayerischen Lössen treten aber oftmals mit einer Kalkschicht ummantelt auf [DOBNER, 1984]. Um daher eine Anreicherung von Feldspatkörnern mit möglichst homogener interner Dosisverteilung zu gewinnen, wurde durch Aufschlännen der Probe und Zentrifugieren (2000 Umdrehungen / min) zuerst in einer 2,62g/cm³-dichten Lösung der Quarz und schwerere Minerale abgereichert. Dann wurde beim Rest der Probe der Albit-Gehalt durch Aufschwemmen und Zentrifugie-

¹⁸ Schwerflüssigkeiten: „Flüssigkeiten besonders hoher Dichte, die in der Mineralogie zur Dichtebestimmung unbekannter Schwerminerale herangezogen werden können und auch zur Trennung von Mineralgemischen eingesetzt werden können“ [RÖMPP, 1999]

ren in einer $2,58\text{g/cm}^3$ -dichten Lösung angereichert. Die nötigen Dichten wurden durch entsprechend wässrige Lösungen von Natrium-Polywolframat erzeugt.

Die Probe wurde anschließend wieder in fünf Spülvorgängen in bidestiliertem Wasser und einem abschließendem Spülvorgang in Aceton von der Schwerflüssigkeit gereinigt und bei 50°C getrocknet.

4.4.3 Aufbringen auf Probenträger

Die Proben wurden gewogen auf die Probenträger aufgebracht. Für die Messungen im Gerät TL/OSL-DA 12 (Risø) bestanden die Probenträger aus Stahlplättchen von 0,98cm Durchmesser - es wurden je Probenträger 5mg Probe aufgetragen; für die Messungen im SURRC-PPSL-Gerät bestanden die Probenträger aus Aluschälchen von 4,4cm Durchmesser - es wurden je Probenträger 250mg Probe aufgetragen.

Um die Probe auf den Probenträgern zu fixieren, wurden diese zuvor mit Siliconöl eingesprüht.

4.5 Durchführung von Bestrahlungen

Für die TL- und PSL-Messungen im Gerät TL/OSL-DA 12 (Risø) wurden die Bestrahlungen sämtlich mit der ^{90}Sr - β -Quelle, mit dem das Gerät ausgestattet ist, durchgeführt. Diese wurde im Jahr 1997 für Grobkeramik als Bestrahlungsgut kalibriert. Sie wies bei Kalibrierung 1997 eine Dosisleistung von $56 \pm 9\text{mGy/s}$ auf [NIEDERMAYER, HEIDE, GUGGENBERGER & DALHEIMER, 2000].

Für die Messungen am SURRC-PPSL-Gerät wurden sehr niedere Dosen benötigt. Dazu wurde die Bestrahlungsanlage „Eldorado 78“ der GSF¹⁹ verwendet. Bei der Quelle dieser Anlage handelt es sich um ^{60}Co . Die Anlage ist eine offene Bestrahlungsanlage, d.h., ein einzelner Kobaltstab sitzt dem Bestrahlungsgut gegenüber, wobei seine Achse in Richtung des Bestrahlungsgutes zeigt. Das Normfeld, in dem die Anlage kalibriert wurde und in dem die Kalibrierung in Zeitabständen von 3 Monaten verifiziert wird, befindet sich im Abstand

¹⁹ GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Ingolstädter Landstr.1, 85764 Neuherberg

von 1,2m und misst 12x12cm. Die Bestrahlungsanlage wurde bei Beschaffung am 9. August 1988 kalibriert; die Freiluftionendosisleistung lag damals bei 0,0971mC/(kg s) [HOCHHÄUSER, 2001].

Um die für die vorliegende Arbeit notwendigen Dosen im Dosisbereich von einigen μGy bis hin zu 45mGy dem Bestrahlungsgut applizieren zu können, wurde in einem Abstand von 8m von der Quelle bestrahlt. In diesem Abstand ergab sich eine Dosisleistung von 13,6 $\mu\text{Gy/s}$.

Da es sich um γ -Strahlung handelt, wurde zum Aufbau des Sekundärelektronengleichgewichtes aufgrund der Ähnlichkeit der Materialien in chemischer Zusammensetzung und Dichte 2mm Glas verwendet. Die Proben waren während der Bestrahlungen lichtdicht verpackt.

Es wurde während der gesamten Probenaufbereitung und der Bestrahlungen generell sorgsam darauf geachtet, dass die Proben keinem anderen als stark reduziertem Laborlicht in einem Wellenlängenbereich von 600nm - 690nm exponiert wurden.

5. Ergebnisse: Dosimetrische Eigenschaften von Grobkeramik unter Verwendung von PPSL anhand des Feldspatgehaltes

(Zur besseren Lesbarkeit der in den Messungen ermittelten Zusammenhänge sind im vorliegenden Kapitel lediglich die Glowkurven, Ausleuchtkurven und Messdiagramme der zur Probe LBB (siehe Tab. 1, S. 65) gehörenden Messungen dargestellt. Die aus den Messungen resultierenden Ergebnisse werden anhand dieser Kurven erläutert. Auf etwaige Abweichungen in den Charakteristiken der Kurven für einzelne andere Proben wird im Text verwiesen.

Der gesamte Satz der Messkurven, d.h. die zu den übrigen Proben gehörenden Messkurven sind im Anhang A 1 zu finden.)

5.1 Vorversuche: Probeneigenschaften gegenüber Thermolumineszenz

5.1.1 Die Glowkurve - Abhängigkeit des Messsignals von der Probertemperatur

Zunächst wurden die TL-Charakteristika, insbesondere die Glowkurve untersucht. Dazu wurden die Proben mit verschiedenen Dosen bestrahlt. Zudem wurden 4 Teilproben von Probenmaterial, das vor der Mineralientrennung (Kap. 4.4.2) von der restlichen Probe abgenommen wurde, mit einer Dosis von 1Gy bestrahlt. Zuerst wurden alle Proben 0,1s infraroter Stimulation ausgesetzt, um zum Einen die Dosisabhängigkeit von PSL prüfen zu können, zum Anderen, um den Erfolg der Mineralientrennung messen zu können. Um die gesamte Glowkurve darzustellen, wurde bei den TL-Messungen die Proben mit einer Heizrate von 5°C/s bis 700°C geheizt.

Da über evtl. vorhandene Sensitivierungseffekte durch wiederholtes Heizen an diesen Proben noch nichts bekannt war, wurden die Messungen für jeden Dosispunkt an jeweils 4 Teilproben einer Probe durchgeführt, sodass jeweils eine Probe nur einmal gemessen wurde. Die Werte eines Dosispunktes wurden im Anschluss gemittelt.

Ergebnisse:

Die Glowkurven zeigen ein deutliches Maximum bei 150°C und im Bereich von 200°C bis 350°C ein dosisabhängiges Signal, das nicht eindeutig einem Maximum zugeordnet werden kann (vgl. Abb. 23). Bei 400°C steigen alle Glowkurven sehr stark an zu Werten, die das dosisabhängige Signal um bis zu 4 Größenordnungen übersteigt. Auch ist in diesem Bereich das Signal nicht mehr dosisabhängig. Dies liegt an der Schwarzkörperstrahlung aufgrund der hohen Temperatur. Daher wurde die Temperatur von 400°C in den folgenden Messungen nicht überschritten.

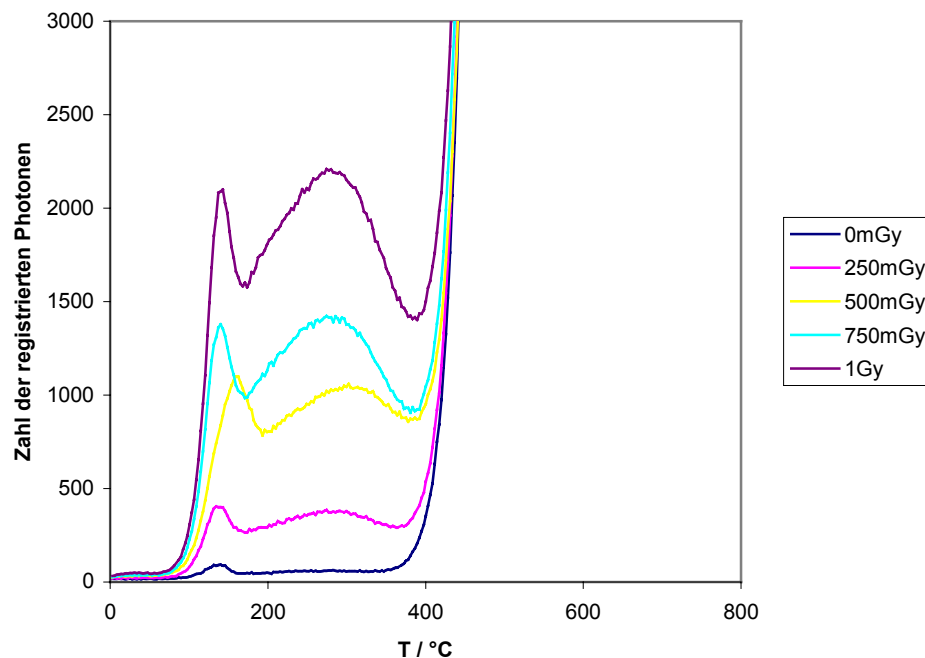


Abb. 23: Probe LBB: gemittelte Glowkurven (aus jeweils 4 Teilproben) für die Dosispunkte 0mGy, 250mGy, 500mGy, 750mGy und 1Gy (insgesamt 16 Teilproben; „Multiple-Aliquot“)

Die Anwendung der Mineralientrennung führte nur in drei Fällen zu einem Anstieg der Signalhöhe: sie brachte für die Proben GM, HHDI und LBB Signalgewinne im Bereich von 12% bis 24% (vgl. Tab. 2). Da sie sich aber in keinem Fall negativ auswirkte, d.h. im Rahmen der Messunsicherheiten in keinem Fall zu Signalverlusten führte, ist sie – im Besonderen für sehr kleine Dosen und mithin für sehr kleine zu erwartende Signalhöhen – angebracht.

Tab. 2: Signalgewinne durch Mineralientrennung

Probe	Signalgewinne / %
GM	15 ± 15
HHDI	24 ± 12
AK	1 ± 11
LBB	12 ± 7
Z	-5 ± 12
Aich	-8 ± 17
ASMO	-2 ± 11
KB	-6 ± 16
P	30 ± 40

5.1.2 Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung

Zur Prüfung, ob bei dem vorliegendem Probenmaterial der Effekt der Empfindlichkeitsänderung auftritt, wurde ein Satz noch nicht bestrahlter und gemessener Teilproben mit verschiedenen Dosen bestrahlt und anschließend mit TL gemessen (vgl. Abb. 24). Dabei wurden alle Bestrahlungen und Messungen an den jeweils selben Proben durchgeführt. Bestrahlt wurde mit 160mGy, 410mGy, 660mGy, 910mGy, 1160mGy und abschließend nochmal mit 410mGy. Die Bereiche, in denen das Signal der Glowkurven proportional den Dosen war, war für alle Proben zwischen 250°C und 300°C. Über diese Bereiche wurde integriert (vgl. Abb. 25).

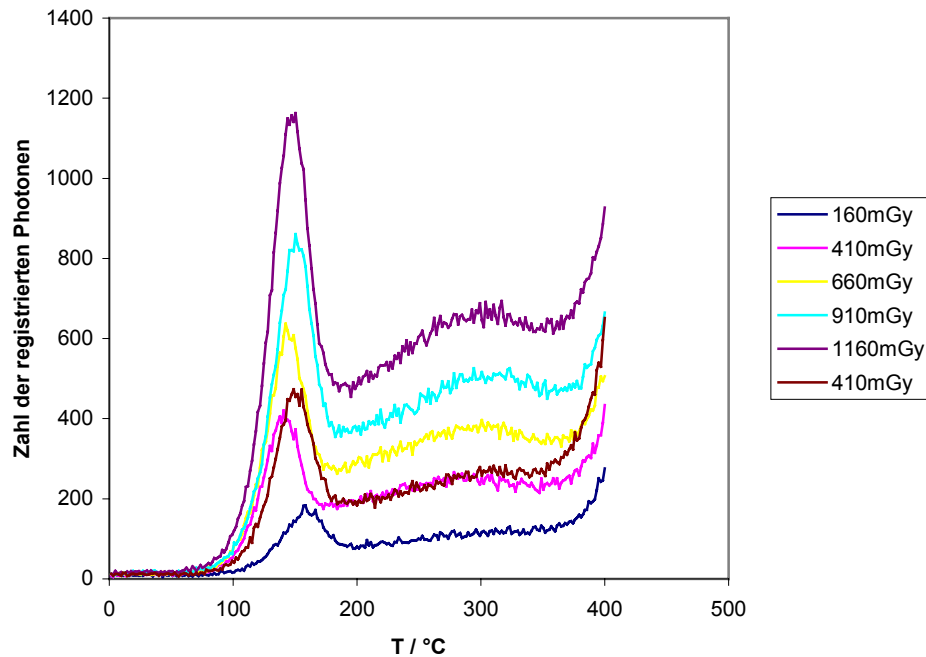


Abb. 24: Probe LBB: Glowkurven für die Dosispunkte 160mGy, 410mGy, 660mGy, 910mGy und 1160mGy, ermittelt an *einer einzigen* Teilprobe durch wiederholte Bestrahlungs-Mess-Zyklen („Single-Aliquot“); Überprüfung etwaiger Empfindlichkeitsänderungen durch Wiederholung der Messung des Dosispunktes 410mGy

Es zeigte sich keine Empfindlichkeitsänderung oder ein leichter Anstieg von maximal 14,7% zwischen den beiden Messungen der 250mGy-Bestrahlungen (vgl. Tab. 3). Dies ist gemessen an der Tatsache, dass 3 Bestrahlungen und Messungen dazwischen liegen, gering und wird bei den erwarteten Messunsicherheiten von bis zu 20% als die Gesamtmessung nicht gravierend beeinträchtigend beurteilt.

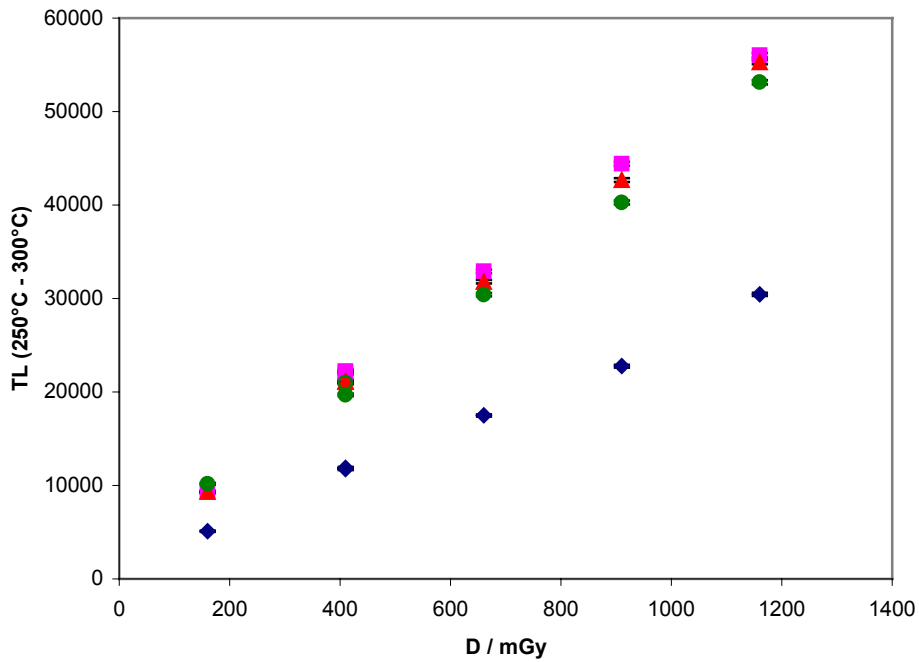


Abb. 25: Probe LBB: Integral der Glowkurven über den Temperaturbereich für die verschiedenen Dosispunkte, Single-Aliquot-Verfahren an 4 verschiedenen Teilproben

Tab. 3: Empfindlichkeitsänderung des TL-Signals im Bereich von 250°C bis 300°C bei wiederholter Bestrahlung und Messung

Probe	Empfindlichkeitsänderung / %
GM	12,1 ± 1,2
HHDI	-0,4 ± 1,2
AK	8,4 ± 1,1
LBB	2,2 ± 0,5
Z	7,2 ± 1,2
Aich	2,5 ± 0,9
ASMO	14,7 ± 1,8
KB	4,4 ± 2,5
P	13,5 ± 2,3

5.1.3 Fallen und Rekombinationszentren: Physikalische Eigenschaften

Als wichtige physikalische Eigenschaften sind der energetische Abstand des entsprechenden Energieniveaus zum Leitungsband, die sog. Fallentiefe, und die Verweildauer der Elektronen in den jeweiligen Fallen zu nennen. Die Verweildauer der Elektronen ist gleichbedeutend mit der Lebensdauer eines Signals nach Bestrahlung.

Die Information über die Fallentiefe gibt Aufschluss, welche Fallen mit infrarotem Licht generell, d.h. aus Sicht der Energiebilanz, zusätzlich zu denen, die ausschließlich über für Feldspat typische Mechanismen stimuliert werden (siehe Kap. 2.3.3), ausgelesen werden können. Es handelt sich um all die, deren Fallentiefe kleiner ist als die Energie der Photonen des Lichtes im infraroten Bereich. Dabei bleibt das Franck-Condon-Prinzip²⁰ unberücksichtigt (siehe Kap. 2.3.2), das möglicherweise einen Übergang aus eben diesen Fallen ins Leitungsband ausschließt.

Die Information über die Verweildauer in den entsprechenden Fallen zeigt, ob es zweckmäßig ist, die Information aus diesen Fallen zu löschen. Derartiges Löschen kann durch eine geeignete Vorheiz-Prozedur erfolgen. Notwendig ist eine solche, wenn das gesamte von der Probe stammende Signal kurzlebige Beiträge aufweist. Diese würden sowohl bei Anwendung des Additiv- als auch des Regenerativ-Verfahrens (siehe Kap. 2.4) bei Messung des ursprünglichen Signals bereits verschwunden sein, bei Messung der Vergleichsbestrahlungen aber einen Beitrag liefern und somit das Ergebnis unter Umständen erheblich verfälschen.

5.1.3.1. *Energie*

Wie aus der theoretischen Herleitung der Glowkurven (Kap. 2.3.1, Gl. [9]) hervorgeht, gilt für das Auslesen einer Falle $I_{TL} \propto \exp(-E/kT)$. Dies schlägt sich in der Glowkurve

²⁰ Das Franck-Condon-Prinzip trifft „eine Aussage über die Relaxation des Kerngerüsts eines Moleküls oder des Kristallgitters eines Festkörpers während eines optischen Überganges. [...] Es besagt, dass sich während eines optischen Überganges die Kernkoordinaten der Ionen eines Gitters nicht ändern.“ [LENK, 1989] Es ergeben sich somit als Konsequenz „erlaubte“ (d.h. solche mit hoher Eintrittswahrscheinlichkeit) optische Übergänge und „verbotene“ optische Übergänge (d.h. solche mit geringer Eintrittswahrscheinlichkeit, obwohl sie aus Sicht der Energiebilanz möglich sein sollten).

allerdings nur zu Beginn eines Maximums nieder, wenn die Zahl der Elektronen, die noch in den Fallen sind, groß ist gegenüber der Zahl derer, die ins Leitungsband angehoben werden. Es ergibt sich also für den Anstieg der Glowkurve in ein Maximum $\ln I_{TL} \propto 1/T$. Wenn man dementsprechend $\ln I_{TL}$ über $1/T$ aufträgt, ergibt sich ein linearer Zusammenhang, der sich einer Geraden mit der Steigung $-E/k$ anschmiegt (vgl. Abb. 26). Dies gilt allerdings nur, sofern die Beiträge in der Glowkurve von dem Signal der Anregung nur einer Falle rühren.

Bei Anwendung dieses Zusammenhangs zeigen sich für sämtliche hier untersuchte Proben für das TL-Maximum bei ca. 150°C Fallentiefen zwischen 0,7eV und 0,8eV (vgl. Tab. 4). Dies ist im Einklang mit dem HJT-Modell (vgl. Kap. 2.3.3). Die Fallentiefen sind dabei erheblich geringer als die Energie der stimulierenden Photonen; sie müssen daher im folgenden in Betracht gezogen werden.

Tab. 4: Energien der mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus („Fallentiefe“)

Probe	Energieniveau / eV
GM	0,758 ± 0,005
HHDI	0,703 ± 0,009
AK	0,731 ± 0,005
LBB	0,793 ± 0,005
Z	0,737 ± 0,007
Aich	0,653 ± 0,013
ASMO	0,728 ± 0,005
KB	0,629 ± 0,010
P	0,682 ± 0,008

Für das dosisabhängige Signal im Bereich über 200°C ließ sich diese Betrachtung nicht durchführen, da es sich a) um mehrere Maxima, die einander überlappen, zu handeln scheint und b), da das starke Signal des 150°C-Maximums in diesen Bereich noch hereinspielt.

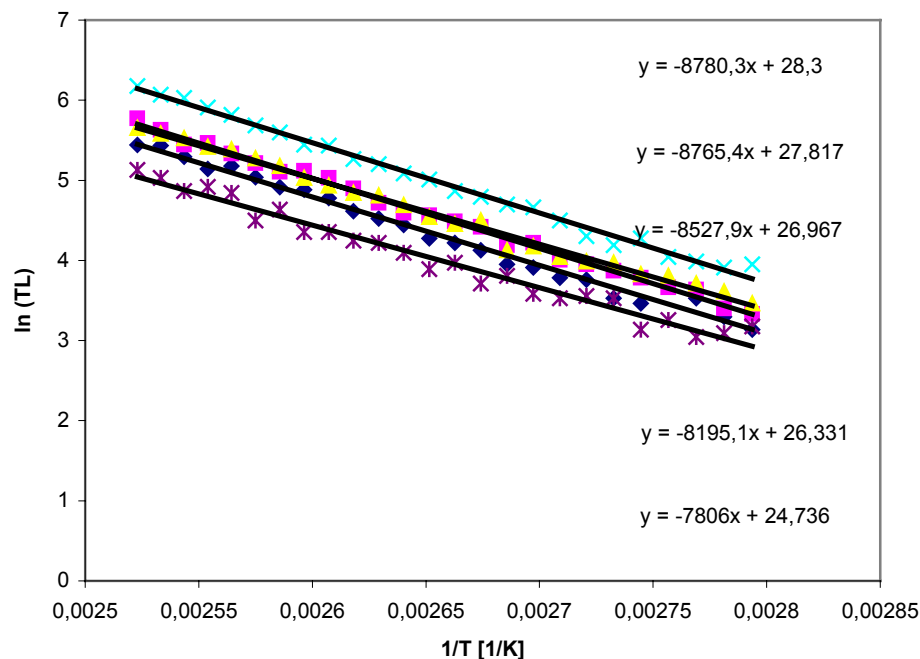


Abb. 26: Probe LBB: Bestimmung der Energie des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus (siehe Text)

5.1.3.2. Lebensdauer

Eine detaillierte Betrachtung der kinetischen Gleichungen (vgl. Kap. 2.3.1) zeigt, dass für Fallen, deren Anregung der Kinetik 1. Ordnung folgt (Kap. 2.3.1, Gl. [10]), ein exponentieller Zerfall zu erwarten ist. Für höhere Ordnungen folgt die Kinetik der Elektronen komplexeren Zusammenhängen. Der Begriff „Lebensdauer“ ist damit streng genommen auch nicht mehr gerechtfertigt. Es wurde daher zunächst geprüft, ob sich dem 150°C-Maximum (das weitere dosisabhängige Signal ließ sich nicht eindeutig definierten Maxima zuordnen - vgl. Kap. 5.1.1, 5.1.2) eine Glowkurve 1.Ordnung anpassen lässt. Nachdem sich dies eindeutig für alle Proben zeigen ließ, wurde die zeitabhängige Änderung der Glowkurve untersucht:

Dazu wurden die Proben mit ca. 1Gy bestrahlt und das TL-Signal bei einer Heizrate von 5°C/s und einer Maximaltemperatur von 400°C sofort (d.h. nach maximal 370s) gemessen. Anschließend wurden dieselben Proben erneut mit 1Gy bestrahlt und nach ca. 30min

gemessen. Schließlich wurden die Proben ein drittes Mal bestrahlt und nach etwa einem Tag gemessen (vgl. Abb. 27).

Als Ergebnis dieser Untersuchung zeigte das starke 150°C-Maximum schon nach ca. 30min einen erheblichen Signalverlust. Nach einem Tag war es in den meisten Fällen gänzlich verschwunden. Den oben postulierten exponentiellen Zerfall voraussetzend, ergibt sich mit $I_{TL,150^{\circ}C} \propto \exp(-t/\tau_{150^{\circ}C})$ und $\tau_{150^{\circ}C}$ gleich der Lebensdauer des 150°C-Maximums für sämtliche Proben Lebensdauern im Bereich von 1 bis 2 Stunden (vgl. Tab. 5). Dies ist für die Anwendung in der Dosimetrie erheblich zu kurz. Es müssen dementsprechend geeignete Vorheiz-Verfahren gefunden werden, Beiträge dieses Signals zu eliminieren.

Das Signal im Temperaturbereich bis 250°C zeigt bei manchen Proben nach einem Tag eine leichte Reduktion, darüber wurde in dem untersuchten Zeitraum von einem Tag nach Messung kein Signalverlust festgestellt. Eine Ausnahme bildet die Probe „Aich“; sie zeigt nennenswerten Signalverlust in allen Temperaturbereichen (vgl. Abb. 27).

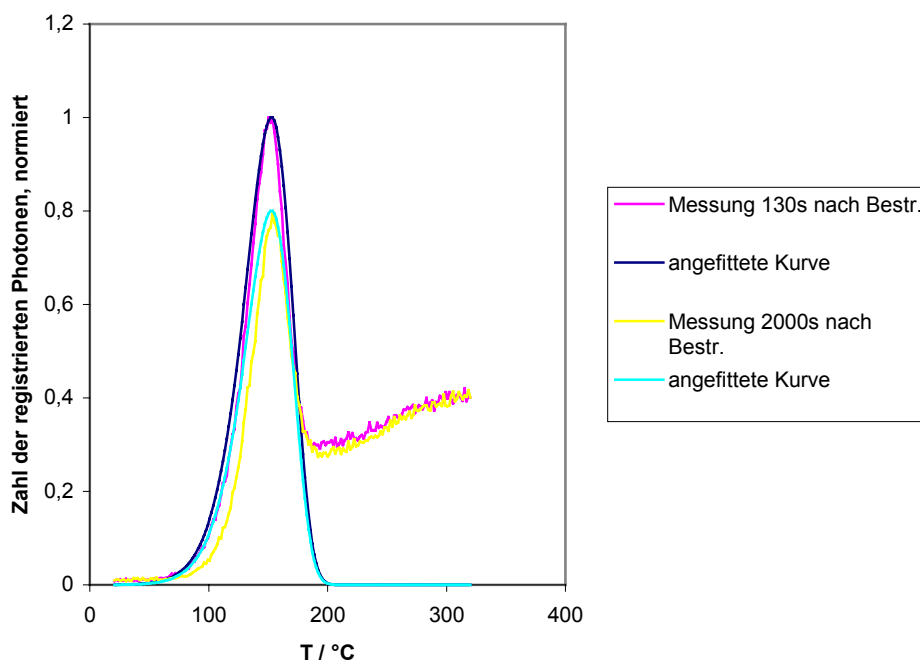


Abb. 27: Probe LBB: Bestimmung der Lebensdauer des Signals des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus

Tab. 5: Lebensdauern des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Signals

Probe	Lebensdauer τ / s
GM	3900 \pm 500
HHDI	5800 \pm 400
AK	6700 \pm 400
LBB	5600 \pm 300
Z	7400 \pm 300
Aich	7900 \pm 800
ASMO	4900 \pm 400
KB	5400 \pm 900
P	5600 \pm 500

5.1.4 Vorheizverfahren

5.1.4.1. Vorheiztemperatur

Aufgrund der in Kap. 5.1.3 gefundenen Ergebnisse und der Tatsache, dass sich diese Ergebnisse generell für alle Proben gleichermaßen zeigten, wurde zur Unterdrückung des 150°C-Maximums die geringfügig darüber liegende Temperatur von 160°C gewählt. In den Glowkurven unvorbeheizter Proben ist das Signal bei 160°C zwar noch nicht stark reduziert, für alle Proben ist aber das Maximum überschritten, sodass die Temperaturbedingung für das Löschen des Signals gegeben sein muss. Mit einer entsprechenden Vorheizdauer ist somit der Beitrag dieses Signals zu eliminieren.

5.1.4.2. Vorheizdauer

Um diese zu ermitteln, wurden die Proben sämtlich wiederholt mit etwa 1Gy bestrahlt und anschließend die Glowkurven mit einer Heizrate von 5°C/s und einer Maximaltemperatur von 400°C gemessen (vgl. Abb. 28). Dabei wurde der Heizprozess bei 160°C angehalten und diese Vorheiztemperatur für verschiedene Zeitdauern zwischen 0s und 120s gehalten. Beim Vergleich des Signals, das sich durch die Integration der Glowkurve

von 160°C bis 176°C ergibt, stellt man einen Abfall fest, der sich einem Grenzwert anschmiegt. (Der Integrationsbereich von 160°C bis 176°C wurde gewählt, um einerseits die statistischen Schwankungen zwischen zwei Messungen zu unterdrücken, und andererseits wurde er nicht größer gewählt, da im Bereich >180°C in aller Regel wieder ein dosisabhängiges Signal zu beobachten ist.) Bei manchen Proben ist dieser Grenzwert nach 60s bereits erreicht (z.B. Probe AK oder P, vgl. Anhang A 1.1.4), bei anderen scheint eine Vorheizdauerdauer von 120s notwendig zu sein (z.B. Probe LBB, vgl. Abb. 28). Um in jedem Fall sicher zu sein, das Signal des 150°C-Maximums gelöscht zu haben, wird im Folgenden stets eine Vorheizdauer von 150s gewählt.

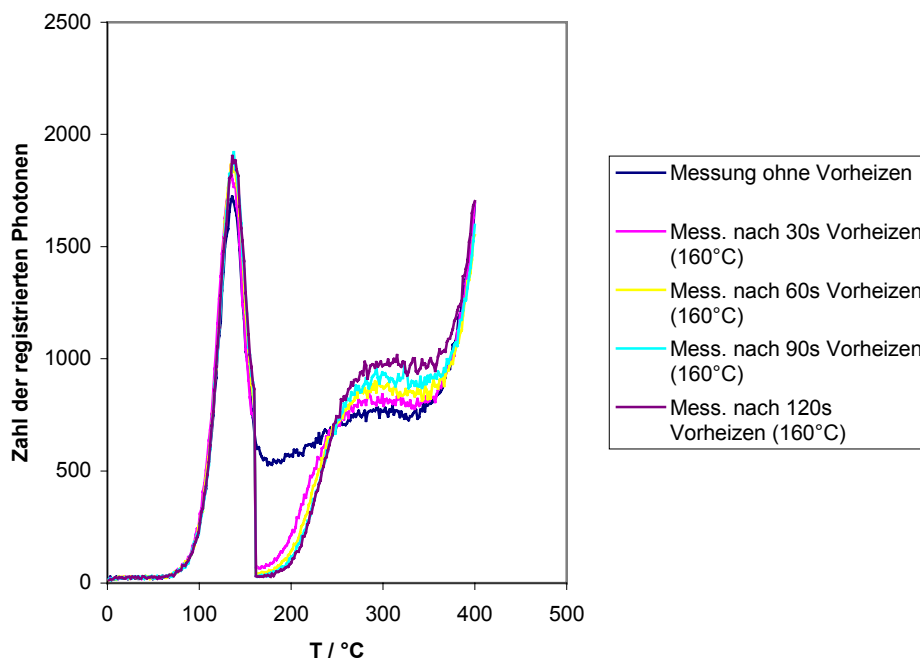
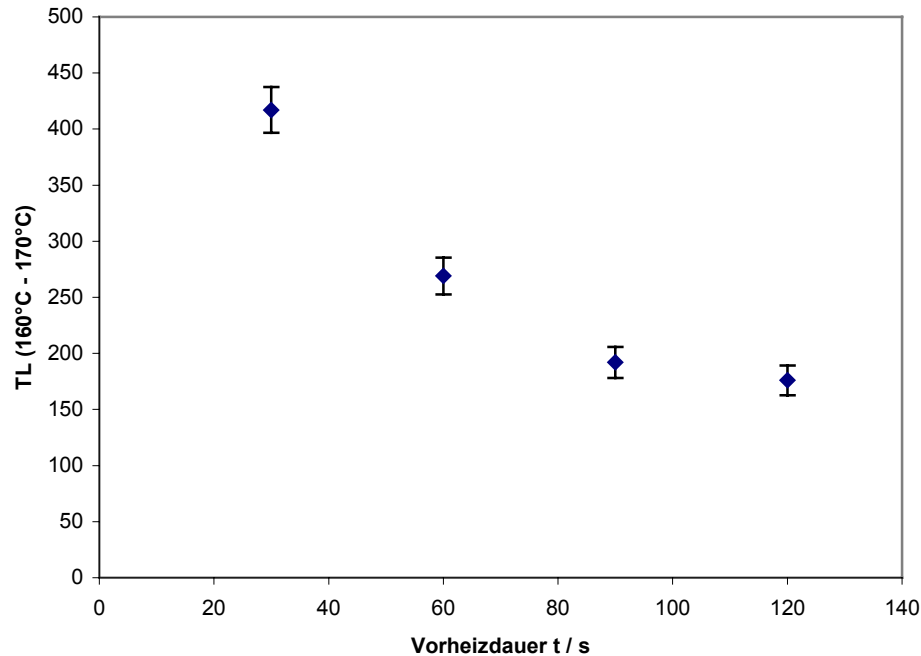


Abb. 28a (Erläuterung S.90)

Bei Betrachtung der Glowkurven in Abb. 28a fällt im Temperaturbereich größer 250°C ein Anstieg des Messsignals mit jeder weiteren Messung auf, der nicht mehr durch die in Kap. 5.1.2 festgestellte Empfindlichkeitsänderung erklärt werden kann. Die Erklärung für dieses Phänomen liegt in durch die Vorheiz-Prozedur initiierten Umlagerungseffekten: Elektronen, die sich ursprünglich in Fallen des Fallentyps, der bei 150°C geleert werden kann, befanden, werden durch das Vorheizen ins Leitungsband gehoben und von dort in Fallen größerer Fallentiefe eingefangen. Da das Vorheizen den natürlichen Prozess des

thermischen Signalverlustes lediglich zeitlich verkürzt simuliert, zeigt sich hier die Bedeutung des Vorheizens nicht nur darin, dass thermisch nicht stabile Signale gelöscht werden, sondern auch, dass dadurch thermische Umlagerungsprozesse stimuliert werden.



b

Abb. 28: Probe LBB: Messungen nach Bestrahlung mit 1Gy nach Vorheizen bei 160°C über Vorheizdauern von 0s, 30s, 60s, 90s und 120s: a) Glowkurven; b) Integral der Glowkurven über den Temperaturbereich von 160°C - 170°C

5.2 Probeneigenschaften gegenüber Photonen-stimulierter Lumineszenz

Aus den Vorversuchen ergab sich ein erster Entwurf eines Messprotokolls, der vor allem ein geeignetes Vorheizverfahren beinhaltet. Da man bisher aber noch keine genaue Kenntnis hat, welche TL-Signale mit dem Signal der infrarot stimulierten Lumineszenz korreliert sind (vgl. Kap. 2.3.3), lassen die TL-Messungen noch keine weiteren Rückschlüsse auf ein geeignetes Messprotokoll für PSL- bzw. PPSL-Messungen zu. Dazu ist zunächst zu prüfen, eine wie lange PSL-Messdauer erforderlich ist, um das Signal durch die Messung analog den TL-Messungen löschen zu können. Die Probe zu heizen mit dem

Ziel, das Signal zu löschen, ist als weitere Möglichkeit zu prüfen. Zudem ist, da aus oben genannten Gründen (vgl. Kap. 5.1) nicht von einer Konstanz der Empfindlichkeit der Messung gegenüber der zu messenden Dosis bei wiederholten Bestrahlungs-Mess-(Lösch-)Zyklen ausgegangen werden kann, diese zu prüfen.

5.2.1 Löschen durch Infrarotstimulation

Um diese erste Möglichkeit des Löschens zu prüfen, wurde bestrahltes Probenmaterial mit dem SURRC-PPSL-Gerät gemessen und beobachtet, welche Messdauern erforderlich sind, bis die mittlere Zahl der emittierten Photonen auf Null zurückgefallen ist.

Zunächst wurden im Risø-Gerät alle Proben mit ca. 1Gy bestrahlt und mit einer willkürlichen Messdauer von 300s mit infraroter Stimulation gemessen. Die Probe LBB zeigte sich dabei mit dem höchsten Signalwerten und somit als die empfindlichste. Im Folgenden wurde sie mit einer hohen Dosis von 12Gy bestrahlt – in diesem Bereich liegt die maximale Dosis, deren Ermittlung in der retrospektiven Dosimetrie eine Rolle spielt – und mit dem SURRC-PPSL-Gerät gemessen. Es zeigte sich dabei, dass eine Messdauer von 7 Stunden nicht ausreicht, das Signal komplett zu löschen. Das Löschen mittels Stimulation ist somit unhandlich und kann daher nur für kleinste Dosen im Bereich der Nachweisgrenze von praktischer Bedeutung sein. Da in der vorliegenden Arbeit ein universelleres Messprotokoll angestrebt wurde, wurde diese Möglichkeit für weitere Messungen verworfen.

5.2.2 Löschen von Restsignalen

Da es bei der Untersuchung von Restsignalen um unter Umständen sehr kleine Signale geht, wurden auch bei dieser Untersuchung die Messungen mit dem SURRC-PPSL-Gerät vorgenommen.

5.2.2.1. Löschttemperatur

Zur Untersuchung der Löschttemperatur wurde die mit 12Gy bestrahlte Probe LBB (siehe Kap. 5.2.1) zunächst einer Infrarotstimulation von 30s Dauer ausgesetzt. Dann wurde die Probe zum Löschen des Signals 2min im Muffelofen bei 400°C ausgeheizt. Die Temperatur von 400°C wurde deshalb gewählt, weil sie bei den Thermolumineszenz-Messungen zum Löschen des Signals ausgereicht hatte. Anschließend wurde sie im SURRC-PPSL-Gerät mit einer Messdauer von 100s gemessen. Dieser Zyklus 2min Muffelofen - 100s Messung, wurde solange wiederholt, bis sich bei dem verbleibenden Signal keine weitere Reduktion zeigte. Dies war nach sechs Zyklen der Fall (vgl. Abb. 29).

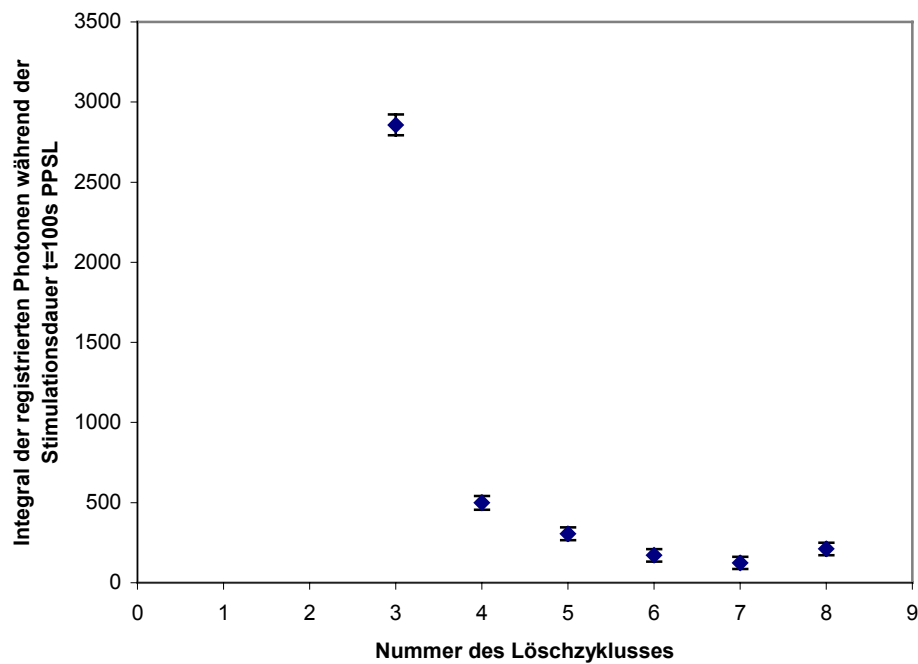


Abb. 29: Probe LBB: Reduktion des PPSL-Messsignals einer mit 12Gy bestrahlten Probe nach Messzyklen von jeweils 2min. bei 400°C

Da das verbleibende Signal aber nicht Null war, wurde das Experiment mit weiteren Zyklen ergänzt, wobei nun aber eine Löschttemperatur von 450°C eingestellt wurde. Es zeigte sich nun ein komplettes Löschen des Signals nach bereits 2 Zyklen. Somit wurde für sämtliche weiteren Experimente eine Löschttemperatur von 450°C gewählt.

5.2.2.2. Löschdauer

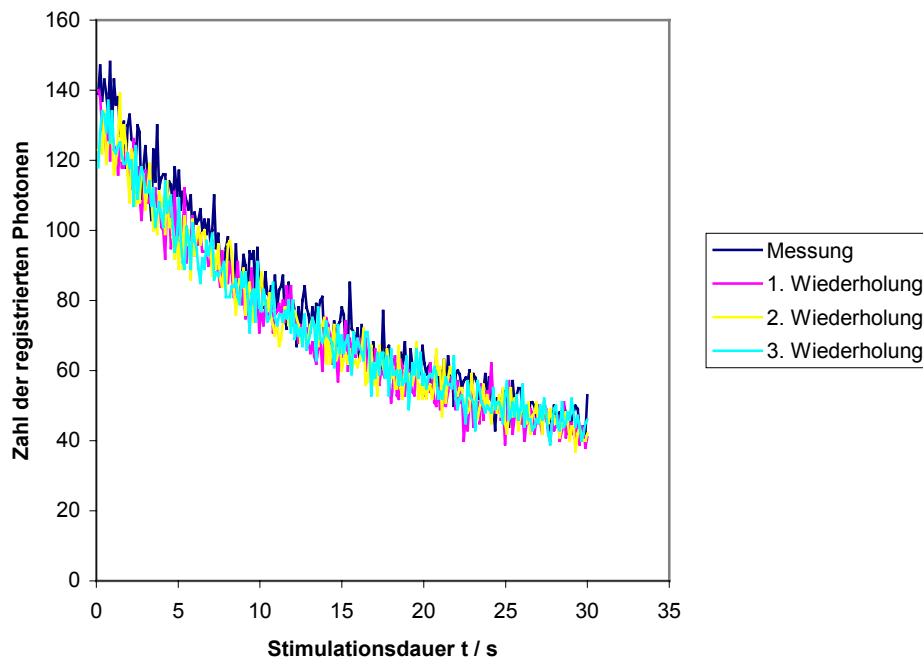
Die Löschdauer, d.h. die Anzahl der in Kap. 5.2.2.1 beschriebenen Löschyklen, zeigte sich von Probe zu Probe von Messung zu Messung als leicht unterschiedlich. Daher wurde im Folgenden das Verfahren so gewählt, dass die Proben zum Löschvorgang 2min lang einer Temperatur von 450°C ausgesetzt wurden. Im Anschluss aber jeweils durch nochmalige Messung von 100s im SURRC-PPSL-Gerät der Erfolg des Löschens verifiziert wurde. Sollte das Signal dann noch nicht gleich Null sein, wurde die Probe ein jeweils weiteres Mal für 2min einer Temperatur von 450°C ausgesetzt.

5.2.3 Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung

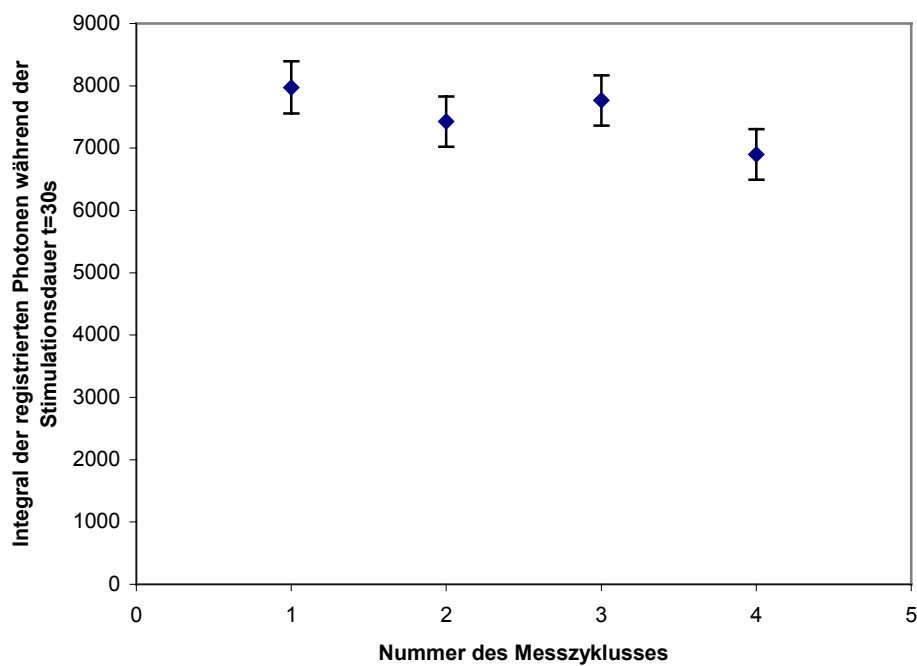
Um die Proben auf eine etwaige Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung zu prüfen, wurde ein Satz frischer, zuvor zu noch keiner Messung verwendeten Proben mit jeweils 1Gy bestrahlt und nach Anwendung der gefundenen Vorheizprozedur von 150s Heizen bei 160°C, dann einer 30s infrarotstimulierter PSL-Messung im Risø-Gerät ausgesetzt und schließlich der Löschprozedur bei 450°C unterworfen. Dieser Zyklus wurde fünfmal wiederholt.

Diese Messung sollte aufgrund ihres Aufwandes im Risø-Gerät durchgeführt werden. Dazu wurde die nötige Löschdauer im Risø-Gerät überprüft. Es zeigte sich, dass für das Risø-Gerät eine Löschdauer von 30s ausreichte. Der Grund hierfür liegt in der dem Gerät eigenen geringeren Empfindlichkeit.

Bei Vergleich der 5 PSL-Messungen konnte für die Proben ASMO, KB und P kein Signal nachgewiesen werden, sodass festzustellen ist, dass die Nachweisgrenze für eine Dosisrekonstruktion an diesen Probenmaterialien und unter Verwendung des Risø-Gerätes mit dem vorliegenden Messprotokoll jedenfalls größer als 1Gy ist. Für den Satz der auswertbaren Proben, bestehend aus den Proben GM, HHDI, AK, LBB, Z und Aich, zeigte sich keinerlei Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und Messung (vgl. Abb. 30).



a



b

Abb. 30: Probe LBB: wiederholte Messung nach Bestrahlung mit 1Gy (Vorheizten bei 160°C über Vorheizdauern von 150s): a) Ausleuchtcurven; b) Integral der Ausleuchtcurven über die Stimulationsdauer $t=30s$

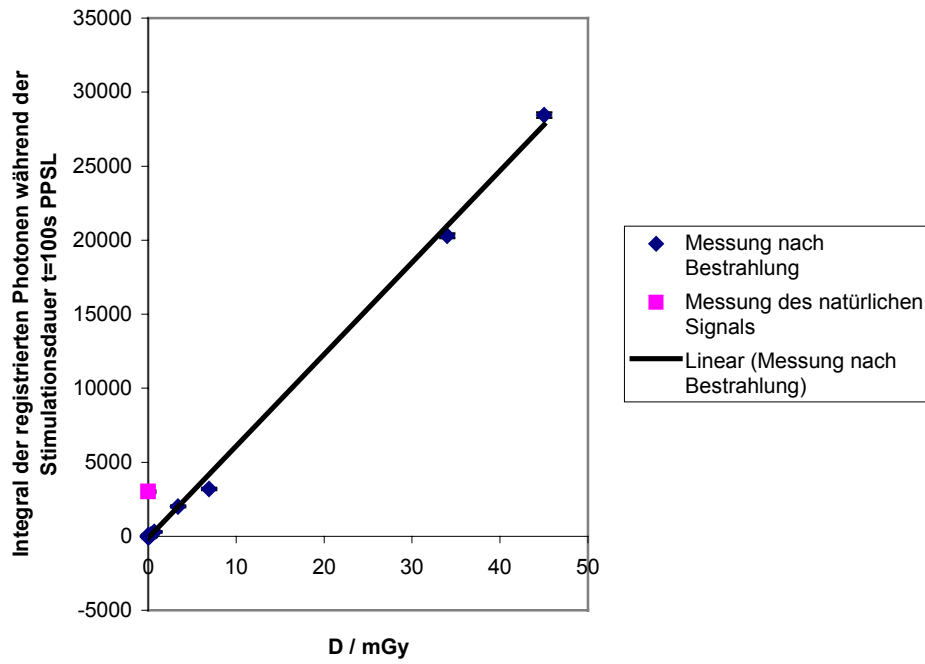
5.3 Bestimmung der Nachweisgrenze der Messmethode unter Verwendung der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz

Aus den Ergebnissen der Experimente der Kap. 5.1 und 5.2 ergibt sich folgender Messzyklus, der bei Bedarf beliebig wiederholt werden kann:

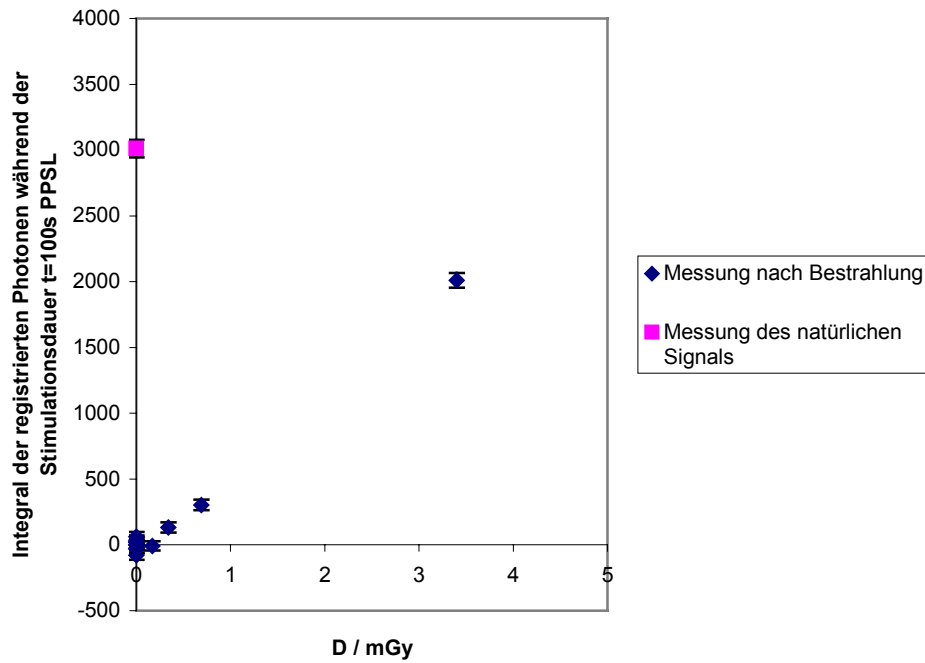
- 1.) (evtl. Bestrahlung mit definierter Dosis)
- 2.) Vorheizen: 150s bei 160°C
- 3.) 100s Messung im SURRC-PPSL-Gerät
- 4.) Löschen des Restsignals bei 450°C
- 5.) Überprüfung des Löscherfolges durch 100s Messung im SURRC-PPSL-Gerät
- 6.) Ggf. Wiederholung der Schritte 4.) und 5.)

Hier sollte er verwendet werden, um die Nachweisgrenzen der verschiedenen Probenmaterialien unter Verwendung des SURRC-PPSL-Gerätes zu ermitteln. Dazu wurde in Schritt 1.) zunächst keine Bestrahlung durchgeführt, sondern in dem ersten Zyklus das natürliche Signal aufgrund des Alters des jeweiligen Ziegels ermittelt. In jedem weiteren Zyklus wurden die Proben mit verschiedenen Dosen bestrahlt. Dabei wurde zunächst mit einer Dosis von 45mGy begonnen. Dies ist ein Wert, der mit anderen Methoden ebenfalls zu erreichen ist [BAILIFF *et al.*, 2000]. In den darauf folgenden Zyklen wurden immer kleinere Dosen angewandt, bis kein Signal mehr nachzuweisen war.

Es ergaben sich in allen Fällen lineare Dosis-Wirkungs-Beziehungen (vgl. Abb. 31), aus denen sich die Nachweisgrenze berechnen ließ (Tab. 6).



a



b

Abb. 31: Probe LBB: Dosis-Wirkungs-Beziehung bei Verwendung von PPSL (Vorheizen bei 160°C über 150s; Single-Aliquot-Verfahren): a) Dosisbereich bis 50mGy; b) Dosisbereich bis 5mGy

Tab. 6: Ermittelte Nachweisgrenzen für die untersuchten Probenmaterialien

Probe	Nachweisgrenze / μGy
GM	3700
HHDI	540
AK	520
LBB	180
Z	5900
Aich	1300
ASMO	20000
KB	28000
P	64000

Zur Überprüfung der ermittelten Ergebnisse wurden mithilfe der im ersten Zyklus ermittelten natürlichen Signale und der Kenntnis des Alters des Ziegels die natürliche Dosisleistung bestimmt. Diese sollte aufgrund der Tatsache, dass sämtliche Ziegelproben stets beisammen verwahrt wurden, für alle Proben im Wesentlichen die gleiche sein. Kleinere Abweichungen sind allerdings dennoch möglich, durch unterschiedliche Konzentrationen an Radionukliden in den Proben. Es zeigte sich eine Übereinstimmung (Tab. 7).

Tab. 7: Ermittelte interne Dosisleistung der Proben

Probe	Interne Dosisleistung / mGy/a
GM	1,9
HHDI	2,5
AK	2,5
LBB	2,4
Z	2,9
Aich	3,6

Die Auswertung der Proben ASMO, KB und P ergaben negative Werte; sie waren somit nicht auswertbar. Das dürfte wohl zum Einen an ihrer geringen Empfindlichkeit gegenüber Strahlendosen liegen, zum Anderen an ihren jungen Altern.

5.4 Bestimmung der Lebensdauer des Messsignals

Da die Messmethode aber nur, wie bereits im Kap. 5.1.3 für Thermolumineszenz dargelegt, von Wert sein kann, wenn das Signal für Zeiträume, die in der retrospektiven Dosimetrie von Bedeutung sind, d.h. je nach Anwendung für Zeiträume von einigen Monaten bis hin zu einigen 10 Jahren, Bestand hat, war nun noch die Lebensdauer des Messsignals zu prüfen. Der Hintergrund des Signalverlusts kann verschiedener Natur sein:

- a) Mangelnde thermische Stabilität (die thermische Stabilität steht in unmittelbarem Zusammenhang mit der Falltiefe der Falle, die durch infrarote Stimulation angesprochen wird).
- b) Speziell bei Feldspat sog. „anomales Fading“. Dies zeichnet sich oft durch eine Komponente in Zeiträumen von Tagen und eine in Zeiträumen von Monaten aus.

All diesen Komponenten sollte hier nachgegangen werden.

5.4.1 Thermische Stabilität

Die thermische Stabilität kann durch die Lagerung bei verschiedenen höheren Temperaturen über verschieden lange Zeiträume geprüft werden. Eine Beschreibung dieser Prüfung findet sich bei McKeever [MCKEEVER, 1985] für die Methodik der Thermolumineszenz. Dieses Prüfverfahren wurde hier für die Methodik der Photonen-stimulierten Lumineszenz adaptiert.

Es zeigte sich für die Proben GM, HHDI, AK, LBB, Z und Aich eine thermische Stabilität von mehreren 100000 Jahren (vgl. Tab. 8). Dies ist für Anwendung in der retrospektiven Dosimetrie sicher mehr als ausreichend.

Tab. 8: Lebensdauern des mit infraroter Stimulation verknüpften Signals

Probe	Lebensdauer τ / 1000a
GM	600 ± 400
HHDI	370 ± 70
AK	270 ± 140
LBB	470 ± 100
Z	150 ± 60
Aich	110 ± 70

5.4.2 „Anomales Fading“

5.4.2.1. *Signalverlust im Zeitbereich einiger Tage*

Auf Signalverlust im Zeitbereich einiger Tage wurden die Proben durch den Vergleich von Messung unmittelbar nach Bestrahlung mit 1 Gy und nach ca. 37 Stunden nach Bestrahlung geprüft. Es zeigte sich innerhalb dieser Zeit keinerlei Signalverlust.

5.4.2.2. *Signalverlust im Zeitbereich einiger Monate*

Auf Signalverlust im Zeitbereich einiger Monate wurden die Proben durch den Vergleich von Messung unmittelbar nach Bestrahlung mit 1 Gy und nach 61 Tagen nach Bestrahlung geprüft. Es zeigte sich innerhalb dieser Zeit keinerlei Signalverlust.

6. Unsicherheit und Nachweisgrenze von PPSL in der Retrospektiven Dosimetrie

Die Qualität einer Messmethode lässt sich durch

- die Unsicherheit, mit der Messergebnisse erzielt werden können,
- den Messbereich, in dem mithilfe der Methode Messergebnisse ermittelt werden können, und
- ihre Empfindlichkeit

beschreiben. Mit der **Unsicherheit** einer Messung wird ein um das Messergebnis symmetrischer Wertebereich angegeben, innerhalb dessen der gesuchte, „wahre Wert“ mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit liegt [KUCHLING, 1988]. Die Unsicherheit einer Messung bzw. einer Messmethode setzt sich aus den einzelnen Messunsicherheiten und der statistischen Abweichung mehrerer identischer Messungen zusammen. Sie ist das entscheidende Kriterium für die Einsetzbarkeit und Verwendbarkeit einer Methode.

Durch die Unsicherheit einer Messung ist in der Regel der untere Rand des **Messbereichs**, in dem mithilfe der Methode Messergebnisse ermittelt werden können, bestimmt. Bei den Werten, die diesen Rand beschreiben, handelt es sich um die Nachweis- und die Erkennungsgrenze.

Die **Nachweisgrenze** ist als der kleinste Wert definiert, der mittels einer Methode nachgewiesen werden kann (in unserem Fall die kleinste Dosis, die mit PSL- oder PPSL-Methoden nachgewiesen werden kann), und somit ein Maß für die Güte einer Messmethode. Die **Erkennungsgrenze** ist der *Messwert*, bei dessen Überschreitung ein von Null verschiedenes Messergebnis angenommen werden kann. Nachweis- und Erkennungsgrenze sind somit miteinander verquickt; in aller Regel ist die Nachweisgrenze um etwa den Faktor 3 größer als die Erkennungsgrenze.

Der obere Rand des Messbereichs ist durch physikalische Grenzen gegeben. Bei Lumineszenz-Methoden generell ist dies die Sättigung sämtlicher Fallen eines Kristalls [AITKEN, 1985]. Der obere Rand des Messbereichs ist somit von der Zahl der Fehlstellen in einem Kristall und somit von jedem Einzelfall abhängig. Er liegt aber in jedem Fall

deutlich höher als der für retrospektive Dosimetrie notwendige Messbereich von maximal 10Gy [AITKEN, 1998] und wird daher im Folgenden nicht weiter diskutiert.

Die **Empfindlichkeit** einer Messmethode ist definiert durch „das Verhältnis der Änderung des angezeigten Messwertes zu der ihn verursachenden Änderung der Messgröße“ [BROCKHAUS BAND 6, 1984]. Im Fall der retrospektiven Dosimetrie mittels Lumineszenz-Methoden hängt die Empfindlichkeit ausschließlich von der relativen Dichte der Fehlstellen in einem Kristall ab. Je mehr davon vorhanden sind, desto empfindlicher ist die gesamte Messung. Sie ist somit vom jeweiligen Einzelfall abhängig und wird im Folgenden nicht weiter diskutiert.

In diesem Kapitel soll ein Aufriss der einzelnen Beiträge zur Unsicherheit und zur unteren Grenze des Messbereichs gegeben und deren Einfluss bewertet werden.

6.1 Unsicherheit bei PPSL-Messungen in der retrospektiven Dosimetrie

6.1.1 Generelle Betrachtung

Um die Möglichkeiten, aber auch die Grenzen von Messmethoden beurteilen zu können, ist eine detaillierte Betrachtung der Unsicherheiten bei Messung und Berechnung aller in die Methodik eingehenden Parameter unabdingbar. Die Abschätzung von Unsicherheiten in der Dosisrekonstruktion ist allerdings stets ein schwieriges Unterfangen und wird daher oft nur unzureichend behandelt. Der Grund hierfür ist in der Vielfalt an Einflussgrößen in die Gesamtrechnung zu suchen. Alle diese Einflussgrößen sind ihrerseits mit Unsicherheiten behaftet, wovon manche nur schwer zu evaluieren sind.

Betrachtet man die der Unfalldosis-Rekonstruktion zugrunde liegende Gleichung

$$D_{Unfall} = D_{PPSL} - D_{Alter} , \quad [18]$$

so ist die Unsicherheit für die berechnete Unfalldosis durch

$$\Delta D_{Unfall} = \Delta D_{PPSL} + \Delta D_{Alter} \quad [19]$$

bestimmt. Sie ist durch

- die Unsicherheit der Bestimmung der gesamten, mit PPSL-Methoden feststellbaren Dosis und
- die Unsicherheit der Bestimmung der durch natürliche Strahlung verursachten Altersdosis

festgelegt.

Die Unsicherheit der Messung der gesamten, auf ein Probenmaterial applizierten Dosis, ΔD_{PPSL} , ist somit durch die Messunsicherheit der PPSL-Messung bestimmt.

Für die Bestimmung der Altersdosis werden die Zerfallsraten der in der Probe natürlich vorkommenden α -, β - und γ -Strahler sowie die am Probenort vorliegende kosmische Strahlung gemessen. Aus dieser Messung wird die für die Altersdosis bestimmende Dosisleistung berechnet. Die Unsicherheit der Altersdosis, ΔD_{Alter} , ergibt sich somit aus

- (1) der bei der Bestimmung dieser Dosisleistung auftretenden Unsicherheit und
- (2) der gegebenenfalls vorhandenen Unsicherheit der Kenntnis des Alters der Probe.

Zu (1): Nach einem Unfall, d.h. nach Einwirkung einer zusätzlichen Dosis, ist die Altersdosis mit Lumineszenz-Methoden nicht mehr direkt bestimmbar. Maßgebend für die Bestimmung der Altersdosis sind bisher α - und γ -spektrometrische Messungen sowie β -Zählungen. Es wurden im Laufe der Zeit verschiedene Techniken entwickelt, deren Eignung vom jeweiligen Probenmaterial abhängt. All diese Techniken sind Quellen spezifischer Unsicherheit und sind im Folgenden einzeln zu diskutieren.

Zu (2): Auch das Alter der Proben ist nicht in allen Fällen bekannt. Selbst in der retrospektiven Dosimetrie, in der man es in der Regel mit neueren Gebäuden (d.h. mit Gebäuden im Alter einiger 10 Jahre) zu tun hat, kann das Alter gelegentlich nur schwer ermittelt werden. Dies ist im Besonderen dann der Fall, wenn es sich um Nutz- oder Wirtschaftsgebäude handelt, die den Besitzer – u.U. mehrmals – gewechselt haben. Dies bedeutet, es muss geschätzt werden, was bei jungen Gebäuden zu einer erheblichen relativen Unsicherheit in der Altersdosis führt. Ist nun die Unfalldosis ebenfalls gering, wirkt sich eine große Unsicherheit in der Altersdosis maßgeblich auf die Unsicherheit bei der Ermittlung der Unfalldosis aus.

Eine weitere Quelle von Unsicherheit, die in die obere Gleichung nicht direkt eingeht, liegt darin, dass lediglich die Dosis am Probeentnahmeort festgestellt werden kann und nicht das komplette Ortsdosisfeld. Wenn die Art der Exposition nicht bekannt ist oder aufgrund einer irrtümlichen Annahme über den Unfallablauf falsch angenommen wird, können sich zudem unter Umständen systematische Messfehler bei der Ermittlung der Unfalldosis ergeben. Die Exposition, die beispielsweise von einer vorüberziehenden, radioaktiv strahlenden Wolke herrührt, ist sicherlich anders zu bewerten als die in einem Szenario, in dem sich die strahlenden Radionuklide an Staubteilchen binden und sedimentieren, oder in einem, in dem sich die Radionuklide in Wasser lösen und Aktivität sich in Seen aufakkumuliert. Abhängig von dem jeweiligen Szenario sind bestimmte Anforderungen, die im Folgenden zu diskutieren sind, an die Probenahme zu stellen.

In den meisten Fällen wird man das Unfallszenario kennen bzw. in etwa rekonstruieren können. Es sind aber auch komplexe Unfallhergänge denkbar, in denen sich die Art der Exposition nicht mehr genau rekonstruieren lässt. Ein Beispiel hierfür ist der Reaktorunfall von Tschernobyl, bei dem für Personen in der nächsten Umgebung des Reaktors nicht notwendigerweise klar ist, durch welche Komponenten (direkte Strahlung, Inhalation) und für die einzelnen Komponenten in welchem Ausmaß eine Exposition stattfand. Dann müssen Annahmen getroffen werden, deren Unsicherheiten nur noch schwer zu evaluieren sind.

Schließlich muss von der ermittelten Ortsdosis auf die Personendosis geschlossen werden. Ein Rückschluss auf die effektive Dosis, die eine Person, die sich in diesem Ortsdosisfeld aufhielt, erlitten hat, hängt von einer Reihe Randbedingungen (wie Heterogenität des Feldes und Bewegung in diesem Feld) ab. Diese sind im Nachhinein oftmals nicht mehr genau rekonstruierbar und somit mit Unsicherheiten behaftet.

In die Ermittlung einer Personendosis gehen also

- die Unsicherheiten bei Interpretation des Unfallherganges und damit verbunden die Unsicherheit der richtigen Probenahme,
- die Unsicherheiten bei Bestimmung der Gesamtdosis mittels PPSL,
- die Unsicherheiten bei Bestimmung der Altersdosis,
- die Unsicherheit bei Bestimmung eines Ortsdosisfeldes aus den punktuell in dem Feld gemessenen Dosen und

- die Unsicherheit bei Abschätzung von Personendosen aus dem ermittelten Ortsdosisfeld

ein.

Im folgenden Abschnitt sollen die einzelnen Einflussgrößen in die Gesamtunsicherheit beleuchtet werden und abschließend eine Abschätzung über die Möglichkeiten und Grenzen der retrospektiven Dosimetrie anhand von PPSL-Messungen gegeben werden.

6.1.2 Messunsicherheit der PPSL-Messung

Bei Betrachtung der Messunsicherheit der PPSL-Messung sind verschiedene Beiträge zu unterscheiden: Zunächst ist die Einzelmessung zu berücksichtigen. Bei ihr handelt es sich um die Zählung von Lichtimpulsen. Die daraus resultierende Unsicherheit ist statistischer Natur (vgl. Kap. 6.1.2.1). Um diesem Zählwert eine Dosis zuzuordnen zu können, müssen Vergleichsbestrahlungen durchgeführt werden. Dabei sind verschiedene Methoden denkbar: Additiv- und Regenerativ-Methode (vgl. Kap. 2.4). Ihre jeweiligen Beiträge zur Messunsicherheit der PPSL-Messung werden in Kap. 6.1.2.2 dargestellt. Schließlich können - abhängig von den Eigenschaften des jeweilig vorliegenden Probenmaterials - diese Vergleichsbestrahlungen an einem oder mehreren Aliquoten einer Probe durchgeführt werden. Man spricht von der Single-Aliquot-Methode bzw. der Multiple-Aliquot-Methode (vgl. Kap. 2.4.3). Die Einflüsse der beiden Methoden auf die Messunsicherheit der PPSL-Messung wird in Kap. 6.1.2.3 verglichen.

6.1.2.1. Die Einzelmessung

Der physikalische Effekt, der bei PSL-Messungen mit nicht gepulster Stimulation ausgenutzt wird, ist die Emission von Photonen, wobei – wie oben beschrieben – die Anzahl der Photonen abhängig von der Dosis ist, der die Probe zuvor ausgesetzt war. Stimuliert wird diese Emission durch Beleuchtung mit Licht geeigneter Wellenlänge. Dabei nimmt die Zahl der emittierten Photonen physikalischen Gesetzen folgend ähnlich dem exponentiellen Zerfall im Laufe der Beleuchtungsdauer ab. Das Messsignal besteht nun aus der Summe der, innerhalb eines festgelegten Zeitraumes der Stimulationszeit, emittierten Photonen.

Somit handelt es sich bei der einzelnen PSL-Messung um die Zählung der durch die Stimulation der Probe mit Licht ausgelösten Lichtblitze. Die Unsicherheit, die sich dadurch ergibt, ist rein statistischer Natur; sie ist bedingt durch die stochastische Natur des Auftretens des Lichtblitzes und beträgt bei einem Zählwert von N Lichtblitzen \sqrt{N} . Dies bedeutet, dass die relative Unsicherheit $\frac{\sqrt{N}}{N}$ um so kleiner ist, je größer N ist. Die absolute Höhe von N aber ist, abgesehen von der Empfindlichkeit der jeweiligen Probe, noch von den technischen Rahmenbedingungen der Messung abhängig. Zu diesen gehört die Wahl der Filter und der am Sekundärelektronenvervielfacher anliegenden Hochspannung sowie die technischen Eigenschaften (insbesondere die Totzeit) des Sekundärelektronenvervielfachers und der dazugehörigen Elektronik.

Bei gleichzeitiger Stimulation (d.h. Beleuchtung) und Emission müssen Stimulationslicht und emittiertes Licht getrennt werden. Technisch wird dies durch Trennung nach verschiedenen Wellenlängenbereichen erreicht. Trotzdem kann ein Untergrund, dessen Ursprung im Wesentlichen im elektronischen Rauschen der Messvorrichtung liegt, nicht vermieden werden. Er liefert einen über die gesamte Bestrahlungsdauer konstanten Beitrag. Diesem wird durch die Anwendung der gepulsten Stimulation Rechnung getragen; er wird wie in Kap. 2.3.4 beschrieben unterdrückt. Wenn sich somit der Untergrund in N_U Lichtblitzen manifestiert, so bedeutet dies eine Unsicherheit des Untergrundes von $\sqrt{N_U}$. Durch die Anwendung gepulster Stimulation, wie sie in Kap. 2.3.4 beschrieben wurde, wird dieser Untergrund bereits während der Messung subtrahiert. Das Messergebnis ist somit von dem Untergrund bereinigt. Die Unsicherheit des Messergebnisses ist durch die Gesamtheit der registrierten Ereignisse bestimmt. Sie ist somit $\sqrt{N + N_U}$.

6.1.2.2. Die Messmethode: Additiv- und Regenerativ-Methode

Bisher wurde nur die Unsicherheit der einzelnen Messung betrachtet. Für die Ermittlung der gesamten mit PPSL zu messenden Dosis D_{PPSL} muss aber eine Reihe von Messungen betrachtet werden, deren PPSL-Intensitäten auf der natürlichen (d.h. der Summe von Unfall- und Altersdosis), sowie auf verschiedenen Vergleichsdosen beruht. Die Auswertung der Messungen erfolgt im Rahmen der „Additiv-Methode“ oder im Rahmen der „Regenerativ-Methode“. Im Fall der Additiv-Methode wird die auf der natürlichen

Dosis sowie die auf der natürlichen plus verschiedenen zusätzlichen (additiven) Dosen beruhende PPSL-Intensität gemessen. Durch Extrapolation wird dann die Gesamtdosis ermittelt (siehe Abb. 32; genaue Beschreibung der Additiv-Methode: Kap. 2.4.1).

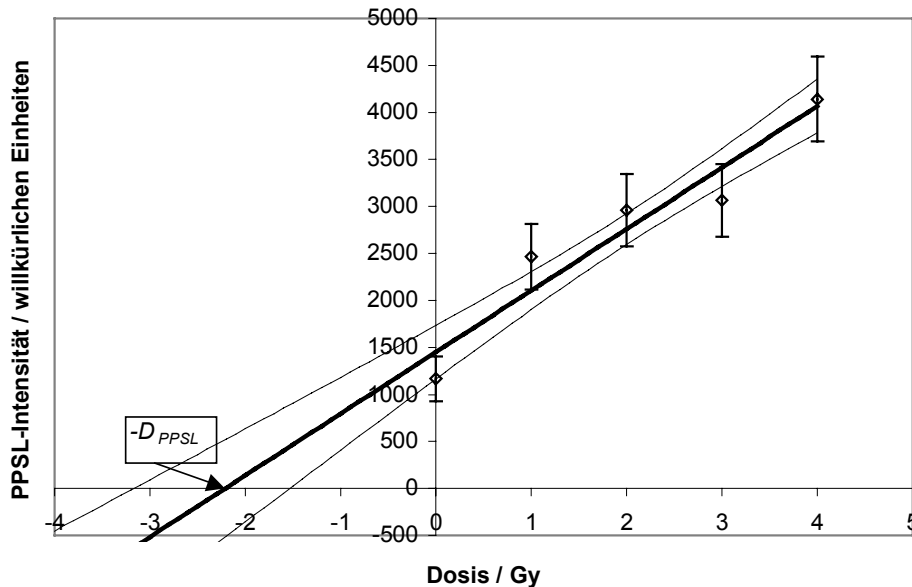


Abb. 32: Fiktives Beispiel für die Additiv-Methode

Bei dem statistischen Verfahren, das für die Anwendung der Additiv-Methode erforderlich ist, handelt es sich um die „lineare Regression“. Dies ist ein Verfahren, das neben der Prognose von y-Werten für bestimmte x-Werte oder umgekehrt auch eine Bestimmung der Unsicherheit, mit der diese Prognose getroffen wird, zulässt. Dazu werden um die Regressionsgerade symmetrische Hyperbel-Äste berechnet, die sich am Ort (\bar{x}, \bar{y}) am besten an die Regressionsgerade anschmiegen, wobei \bar{x} den Mittelwert aller x-Werte – in unserem Fall also aller angewandten Labordosen - und \bar{y} den Mittelwert aller y-Werte, also aller gemessenen PPSL-Intensitäten, darstellt. Der prognostizierte Wert liegt dann mit einer Wahrscheinlichkeit, von der die genaue Lage der Hyperbel-Äste abhängt und die zuvor festgelegt wird, zwischen beiden Hyperbel-Ästen.

Für die Anwendung der linearen Regression ist allerdings die Voraussetzung notwendig, dass es sich bei den Daten um eine „Grundgesamtheit“ handelt. Darunter versteht man „die Menge aller möglicher Realisierungen einer Zufallsvariablen“ [SACHS, 1992, S.89]. Einer einzelnen Realisierung wird ein Zahlenwert zugeordnet und dieser an der x-Achse

aufgetragen. An der y-Achse ist die Häufigkeit, mit der jede einzelne Realisierung auftritt, aufzutragen.

Übertragen auf den Fall der Additiv-Methode entsprechen die einzelnen Additivdosen den einzelnen Realisierungen. Da es sich bei diesen nicht um eine Zufallsvariable handelt (die Additivdosen werden vom Experimentator gewählt) und auch die konkret gewählten Dosen nicht *alle möglichen* Realisierungen darstellen (beliebig viele Zwischenschritte bei der Wahl der Dosen wären nötig), wird ersichtlich, dass die Voraussetzung der Grundgesamtheit nicht erfüllt ist. Dennoch kann die Methode zur Berechnung der Gesamtdosis verwendet werden. Die Unsicherheit, mit der die Gesamtdosis berechnet wird, kann aber lediglich abgeschätzt werden. Zu ihrer Bearbeitung empfiehlt sich das für solche Fälle geeignete Verfahren nach Wagner [WAGNER, 1980]. Als Maß für die Unsicherheit, mit der die Regressionsgerade die x-Achse schneidet, werden die Schnittpunkte der oben erwähnten Hyperbel-Äste mit der x-Achse berechnet. Da aufgrund der Extrapolation diese aber asymmetrisch um den Schnittpunkt der Regressionsgeraden mit der x-Achse liegen, wird als Ergebnis der Dosisberechnung nicht dieser verwendet, sondern der Median der beiden Schnittpunkte der Hyperbel-Äste.

Zur Berechnung der Gesamtdosis (und folglich auch zur Abschätzung der Unsicherheit dieser Berechnung) ist die genaue Kenntnis der Unsicherheiten der Einzelmessungen nicht erforderlich. Sie gehen dennoch durch den Grad, mit dem die Messwerte um den idealen, linearen Funktionsverlauf schwanken, in die Evaluierung der Dosis mit ein.

Im Fall der Regenerativ-Methode wird zunächst die auf der der Probe applizierten Dosis (Unfall- und Altersdosis) beruhende PPSL-Intensität I_0 gemessen. Dann wird die gesamte Information mittels Ausheizen oder intensives Beleuchten gelöscht und durch Bestrahlung mit verschiedenen Dosen der Dosisaufbaueffekt ermittelt. Durch Interpolation ist schließlich die Gesamtdosis festzustellen (siehe Abb. 33; genaue Beschreibung der Regenerativ-Methode: Kap. 2.4.1).

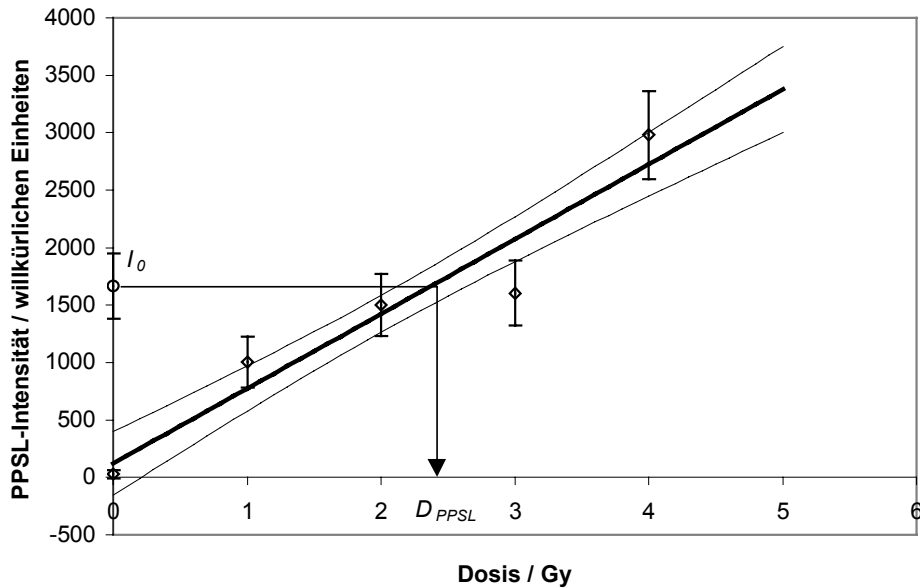


Abb. 33: Fiktives Beispiel für die Regenerativ-Methode

Die oben getroffenen Bemerkungen zur linearen Regression gelten für die Regenerativ-Methode in gleicher Weise. Auch in diesem Fall ist die Voraussetzung der Grundgesamtheit nicht gegeben. Die Unsicherheit ist bei dieser Methode durch a) die Unsicherheit der PPSL-Messung der natürlichen Dosis, sowie b) die Bestimmtheit, mit der die Regressionsgerade bestimmt werden konnten, festgelegt. Sie ergibt sich aus dem horizontalen Schnitt durch die beiden Hyperbel-Äste bei der PPSL-Intensität I_0 . Die Bestimmung des Medians ist bei der Regenerativ-Methode nicht nötig, da aufgrund der hier angewandten Interpolation die Differenz der Abstände der Regressionsgeraden von den Hyperbel-Ästen in x-Richtung vernachlässigbar ist.

Bei Vergleich der beiden Methoden (Additiv- und Regenerativ-Methode) kann festgestellt werden, dass aufgrund der Notwendigkeit der Extrapolation die Unsicherheit, die sich bei Anwendung der Additiv-Methode ergibt, in der Regel bis zu einer Größenordnung größer ist als die durch die Interpolation bedingte Unsicherheit der Regenerativ-Methode.

Die Wahl der Methode ist dennoch nicht durch die Höhe der zu erwartenden Unsicherheit der Messung bestimmt, sondern durch die Eigenschaften des Probenmaterials (z.B. Sensitivierung durch wiederholte Mess-Ausheiz-Bestrahlungs-Zyklen bzw. Mess-Beleuchtungs-Bestrahlungs-Zyklen), sowie der Höhe der gesamten Dosis D_{PPSL} . Dies bedeutet, dass bei Feststellung von Sensitivierung allein die Additiv-Methode möglich ist.

Im Allgemeinen sind bei Verwendung der Regenerativ-Methode geringere Unsicherheiten bei Bestimmung des Messergebnisses zu erwarten. Daher ist die Regenerativ-Methode generell zu bevorzugen.

6.1.2.3. *Der Umgang mit der Messung von Vergleichsbestrahlungen: Multiple- und Single-Aliquot-Methode*

Zum Umgang mit den Messungen der für beide in Kap. 6.1.2.2 beschriebenen Methoden - Additiv- und Regenerativ-Methode – notwendigen Vergleichsbestrahlungen gibt es zwei prinzipiell verschiedene Vorgehensweisen (siehe Kap. 2.4.3):

- die „Single-Aliquot-Methode“ und
- die „Multiple-Aliquot-Methode“.

Bei der „Single-Aliquot-Methode“ wird für die im Folgenden notwendige Bestrahlung mit Vergleichsdosen stets die identische Probe (d.h., es wird nur ein einziger Probenträger verwendet; die darauf befindliche Probe wird zu allen Messungen herangezogen) verwendet. Bei diesem Verfahren ist die Unsicherheit auf die rein statistische Unsicherheit der Einzelmessung (vgl. Kap. 6.1.2.1) beschränkt. Dennoch sind aber bei manchen Mineralen (z.B. bei Quarz), Korrekturen nötig, die ihrerseits mit Unsicherheiten behaftet sind. Die Notwendigkeit für diese Korrekturen ist in der Eigenschaft mancher Materialien begründet, die Sensitivität durch wiederholte Bestrahlungs-Messvorgänge zu ändern.

Bei der „Multiple-Aliquot-Methode“ wird für jede Vergleichsdosis eine ganze Charge des identischen Probenmaterials aufbereitet. Diese wird auf N Probenträger verteilt; bei $i=1 \dots x$ Vergleichsdosen wird eine Vergleichsdosis auf n_i Probenportionen ($\sum_i n_i + n_0 = N$, wobei n_0 Teilproben zur Messung der natürlichen Dosis, d.h. ohne Vergleichsbestrahlungen, vorgesehen bleiben) appliziert und die Zählergebnisse gemittelt. In diesem Fall sind keine Korrekturen von Nöten, dafür muss der Tatsache Rechnung getragen werden, dass die Proben jedes Probenträgers individuelle Eigenschaften aufweisen. Dies führt zu einer - zusätzlich zur Zählstatistik - weiteren statistischen Streuung der Werte und somit zu einem

weiteren Beitrag zur Unsicherheit der Dosisbestimmung. Dieser wird durch Berechnung der Standardabweichung bei Mittelwertbildung berücksichtigt.

6.1.3 Messunsicherheit bei der Bestimmung der Altersdosis

Die Bestimmung der Altersdosis setzt sich aus zwei Beiträgen zusammen: der für die jeweilige Probe zu bestimmenden Dosisleistung und dem Alter der Probe selbst.

6.1.3.1. *Zur Dosisleistung*

Die Dosisleistung setzt sich aus den Beiträgen von α -, β - und γ - Strahlung der in der Probe eingeschlossenen Radionuklide und der kosmischen Strahlung zusammen.

Bei den in der Probe eingeschlossenen Radionukliden handelt es sich zum Teil um Produkte aus den Zerfällen der Uran- und der Thorium-Zerfallsreihen. Uran und Thorium sowie deren Töchter treten in kleinsten Mengen in Tonerde auf und finden sich somit auch in keramischen Erzeugnissen wieder. Wenn der Anteil dieser Einlagerung auch sehr gering ist, muss der Beitrag aufgrund der hohen Dosiswirksamkeit der beteiligten α -Strahler berücksichtigt werden. Dazu kommen Beiträge zur Dosisleistung von den beteiligten β - und γ -Zerfällen. Zur Bestimmung dieses Anteils der gesamten Dosisleistung wird mittels α -spektrometrischer Methoden die Zerfallsrate von Uran und Thorium in der Probe bestimmt. Mittels γ -spektrometrischer Methoden kann dann an geeigneten Radionukliden für jede Zerfallsreihe geprüft werden, ob sich diese in der jeweiligen Probe im radiologischen Gleichgewicht befindet oder ob dieses – etwa durch das Ausgasen von Radon oder durch die Aufnahme von Radium über die Wurzeln in Pflanzen auf den Tonlagerstätten – gestört ist. Aus diesen Daten, sowie aus der Effizienz der α -Strahlung bei der Besetzung

von Fallen mit Elektronen²¹ lässt sich der Anteil der Dosisleistung, der auf Zerfällen innerhalb der Uran- und Thorium-Zerfallsreihen beruht, berechnen.

Weiterhin tragen unabhängig von den Zerfallsreihen β -Zerfälle von ^{40}K zur Gesamtdosisleistung bei. Kalium ist - zumal bei Orthoklas oder Kalifeldspat²² - ein regulärer Bestandteil des Minerals. Somit ist der Anteil der β -Strahlung, der auf Zerfällen von ^{40}K beruht, der einzige, der zusätzlich zu dem Anteil der β -Strahlung, der aus Zerfällen innerhalb der Uran- und der Thorium-Zerfallsreihe resultiert, zu berücksichtigen ist. Weitere Anteile können aufgrund des geringen Vorkommens anderer β -strahlender Radionuklide in den Mineralen der Tonerde unberücksichtigt bleiben.

Der Beitrag der durch die γ -Strahlung verursachten Dosisleistung zur Gesamtdosisleistung beruht zum Teil auf der die Uran- und Thorium-Zerfallsreihe begleitenden γ -Strahlung sowie auf der dem β -Zerfall von ^{40}K nachfolgenden γ -Strahlung. Dieser Teil war bereits oben zu berücksichtigen. Es trägt aber auch die natürliche Umgebungsstrahlung bei, die auf γ -Zerfällen in den die Probe am Probeort umgebenden Medien (Boden, Lithosphäre, etc.) gründet. Zur Bestimmung des Beitrags der natürlichen Umgebungsstrahlung werden γ -spektrometrische Messungen am Probeort durchgeführt²³.

Der Beitrag der durch die kosmische Strahlung verursachten Dosisleistung zur Gesamtdosisleistung beruht auf der Wechselwirkung der hochenergetischen Teilchen- und γ -Strahlung mit dem Probenmaterial. Bei der hochenergetischen Teilchenstrahlung handelt es sich um Sekundärteilchen, die durch die Wechselwirkung von Strahlung aus dem All mit Teilchen der äußeren Atmosphäre in der Stratosphäre gebildet werden. Der Betrag der kosmischen Strahlung hängt von der Höhe des Probenortes über dem Meeresspiegel und

²¹ α -Strahlung hat eine sehr geringe Reichweite. Lokal wird dem Kristall mehr Energie zugeführt und somit mehr Elektronen ins Leitungsband angehoben als in Fallen aufgenommen werden können. Lokal sind praktisch alle Fallen mit Elektronen besetzt und die Zahl der besetzten Fallen ist lokal dosisunabhängig. Dies kann zu einer Unterschätzung der durch α -Strahler verursachten Dosis führen. Das Maß der Unterschätzung wird in dem sog. k-Faktor ausgedrückt (vgl. [WAGNER, 1980]). Dieser wird durch den Vergleich der Lumineszenz, erzeugt durch gleiche Dosen α -Strahlung und γ -Strahlung, ermittelt; er liegt in der Regel zwischen 0,1 und 0,3.

²² Orthoklas oder Kalifeldspat: $\text{K}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$

²³ Im Falle eines Unfalles mit Kontamination muss der Beitrag der Dosis durch diese Kontamination zur Umgebungsstrahlung gesondert ermittelt oder abgeschätzt werden.

dem Breitengrad, auf dem er liegt, ab. Zur Bestimmung der aus der kosmischen Strahlung resultierenden Komponente werden Literaturwerte herangezogen.

Bei der Bestimmung der gesamten Dosisleistung ergeben sich somit folgende mögliche Quellen für die Unsicherheit der Bestimmung der Altersdosis:

- Unsicherheit bei α - und β -Messung,
- Unsicherheit bei γ -spektrometrischen Messungen,
- Unsicherheit bei Überprüfung der Frage nach dem radiologischen Gleichgewicht,
- Unsicherheiten bei Berechnung der aus allen Komponenten resultierenden Dosisleistung.

6.1.3.2. *Zum Alter der Probe*

Zusätzlich zu den Quellen von Unsicherheit bei Bestimmung der Dosisleistung kann in vielen Fällen auch das Alter der Probe²⁴ selbst nicht hinreichend genau angegeben werden können, sondern muss geschätzt werden; seine Angabe ist somit ebenfalls mit einer Unsicherheit behaftet. Deren Einfluss hängt im Besonderen von der Art des Probenmaterials ab: Während beispielsweise bei Porzellanisolatoren das Herstellungsdatum oftmals aufgeprägt ist und sich diese somit aus dieser Sicht als ideale Proben anbieten, ist bei Gebrauchskeramiken des täglichen Lebens (z.B. Aschenbecher, Blumentöpfe oder Sanitärkeramik) das Alter vielfach überhaupt nicht mehr eruierbar oder nur mit sehr großen Unsicherheiten abschätzbar.

Selbst bei Baumaterialien (z.B. Ziegel), deren Alter in der Regel mit dem Alter des jeweiligen Gebäudes angenommen werden, hat sich herausgestellt, dass eine genaue Angabe des Alters des Gebäudes oft nicht möglich ist. Dies gilt im besonderen für Regionen mit großer Bevölkerungsfluktuationen oder häufigem Besitzerwechsel, da dabei

²⁴ Unter „Alter der Probe“ ist in diesem Zusammenhang die Zeitspanne zwischen Brennen eines keramischen Produktes und dem Unfallereignis zu verstehen; im Fall von Ziegeln ist das Alter der Probe in aller Regel mit dem Alter des betreffenden Gebäudes gleichzusetzen.

die persönliche Erinnerung verloren geht. Wenn nun keine behördlichen Unterlagen für den Bau (z.B. Baugenehmigungen) existieren, kann das Alter nur noch über das Alter der umgebenden Bebauung, aus dem Baustil oder ähnlich vager Indizien abgeschätzt werden.

Ein Sonderproblem stellt die Zwei- oder Mehrfachverwendung von Ziegelsteinen dar, wie sie beispielsweise beim Wiederaufbau des durch den 2. Weltkrieg zerstörten Deutschland üblich war. Ziegelsteine, bei denen z.B. aufgrund des Alters des Gebäudes und/oder aufgrund von direkt am Ziegelstein vorhandenen Indizien (wie Mörtelspuren an Stellen, an denen man solche nicht erwarten würde) Verdacht auf derartige Wiederverwendung besteht, sind somit für die Dosisrekonstruktion nur tauglich, wenn es sich um sehr hohe Unfalldosen handelt (Dosen, die erheblich größer als die Altersdosis sind).

6.1.4 Weitere Quellen von Unsicherheiten bei der Bestimmung der Effektivdosis

Alle bisher aufgezählten Quellen von Unsicherheiten sind zu quantifizieren. Auf dem Weg von den gewonnenen Daten zur Bestimmung von Effektivdosen gibt es aber auch Parameter, für die eine Quantifizierung nur näherungsweise möglich ist. Diese werden im Folgenden beschrieben.

6.1.4.1. *Unsicherheit bei der Abschätzung des Ortsdosisfeldes*

Eine Quelle von Unsicherheit ist die Nachzeichnung des Dosisfeldes aus den einzelnen ermittelten Dosen an definierten Orten in ein Ortsdosisfeld. Wenn eine weiträumige Exposition (z.B. durch einen größeren Reaktorunfall) angenommen werden kann, ist das Ortsdosisfeld über den interessierenden Raumbereich sehr wahrscheinlich relativ homogen; die Unsicherheit der Bestimmung des Ortsdosisfeldes reduziert sich dadurch. Bei lokalen Expositionen (z.B. durch eine einzelne Quelle - wie im Fall des radiologischen Unfalls von Kiisia, Estland), bei denen das Ortsdosisfeld in dem interessierenden Bereich (im Fall von Kiisia innerhalb eines Gebäudes) erhebliche Gradienten $\frac{dD}{d\vec{x}}$ aufweist, führen die Unsicherheiten der Einzelmessungen zu einer erheblich größeren Gesamtunsicherheit.

6.1.4.2. *Zusatzbemerkung: Probenahme*

Für eine möglichst genaue Abschätzung des Ortsdosisfeldes sind möglichst viel Proben von möglichst viel verschiedenen Punkten des interessierenden Raumbereiches zu messen. Dies gilt im Besonderen im Fall eines sehr inhomogenen Ortsdosisfeldes (vgl. Kap. 6.1.4.1). Nun ist es aber einerseits denkbar, dass nicht sehr viel Proben zur Verfügung stehen (z.B. in einer Umgebung, in der überwiegend Holz oder Beton als Baumaterial auftritt). Andererseits steht – selbst, wenn ausreichend Probenmaterial vorhanden ist – die Messung und Auswertung sehr vieler Proben in Gegensatz zu einer möglichst schnellen Bewertung einer Unfallsituation, die eventuell nötig ist. In diesem Fall müssen zur Abschätzung des Ortsdosisfeldes einige Annahmen gemacht werden. Von besonderer Bedeutung ist dabei die Annahme über die Art der Exposition: Handelte es sich um direkte Strahlung? Wie lokal war eine radiologische Belastung? Sind Radionuklide freigesetzt worden und, wenn ja, in welcher chemischen Verbindung? Ist diese z.B. flüchtig, dann handelte es sich bei der Exposition um eine strahlende, vorüberziehende Wolke; eine Exposition findet nur kurzzeitig statt; für die effektive Dosis ist Inhalation zu berücksichtigen. Ist sie löslich, dann ist für die Exposition das zum Unfallzeitpunkt herrschende Wetter, die Frage nach Gewässern der Umgebung und nach der Art der Trinkwasserversorgung von großer Bedeutung; die Dauer der Exposition ist dann schwer zu eruieren, sie hängt von den jeweiligen Böden und den Essgewohnheiten der betroffenen Bevölkerung ab; für die effektive Dosis ist Ingestion zu berücksichtigen. Wenn sich die freigesetzten Radionuklide aber beispielsweise an Aerosole binden und möglicherweise als Staub herabsinken, dann ist für die Frage von Bedeutung, wo und wie das geschehen ist; eine Exposition ist dann unter Umständen als langfristig anzunehmen; für die effektive Dosis ist möglicherweise Inhalation *und* Ingestion zu berücksichtigen.

All diese verschiedenen Szenarien schlagen sich in der Art der idealen Probenahme und der Interpretation der Messergebnisse nieder. So ist beispielweise in einem Gebäude an einem mit Radionukliden belasteten Gewässer (Beispiel der Mühle von Metlino) ein grundsätzlich anderes Ortsdosisfeld zu erwarten, als wenn sich auf dieses Gebäude radioaktiver Staub gesenkt hätte und die Exposition von einer dünnen, auf dem Dach ruhenden Schicht herrührte. Entsprechend würde man Proben verschieden nehmen: Mauerziegel aus geringer Höhe im ersten Fall und Dachziegel, falls vorhanden, im zweiten. Falsche Beprobung infolge falscher Vorannahme führt konsequent zu falscher Bewertung der radiologischen Situation.

Nicht in allen Fällen ist eine Annahme der Art der Exposition leicht möglich und die Unsicherheit, mit der die durch sie vermittelte Dosis bestimmt wird, entsprechend gering. Wenn die Unfallsituation unübersichtlich ist (wie z.B. in Tschernobyl), existiert möglicherweise eine Vielfalt von Expositionspfaden; eine Annahme über die Art der Exposition wird schwieriger zu treffen und die Unsicherheit bei der Bestimmung der Unfalldosis entsprechend größer.

Der Vollständigkeit halber sei an dieser Stelle auch erwähnt, dass eine einmal gemachte Annahme über eine Quellenverteilung mit Methoden der Monte-Carlo-Simulation überprüft werden kann, wenn genügend verschiedene Proben von verschiedenen Probenorten des interessierenden Raumbereiches oder Dosistiefenprofile in Volumenproben (z.B. Mauerziegel) vorliegen²⁵. Diese Überprüfung steht allerdings wieder einer möglichst schnellen Bewertung einer Unfallsituation entgegen; für eine detaillierte Beschreibung dieser Methode wird daher auf die Literatur (z.B. GÖKSU *et. al.*, 1996) verwiesen.

6.1.4.3. Unsicherheit bei der Übertragung des Ortsdosisfeldes auf die effektive Dosis einer Einzelperson oder Bevölkerungsgruppe

Schließlich sei noch die Unsicherheit bei der Übertragung des Ortsdosisfeldes auf die effektive Dosis einer Einzelperson oder Bevölkerungsgruppe genannt. Dabei muss berücksichtigt werden, wie sich die betrachteten Personen im Ortsdosisfeld bewegt haben. Über deren Position und Bewegung im Ortsdosisfeld gibt nur eine detaillierte Befragung der Betroffenen Auskunft. Eine genaue Aussage darüber ist in aller Regel nicht möglich, sondern kann nur mit sehr großen Unsicherheiten abgeschätzt werden. Aber auch in diesem Fall gilt, dass sich die Unsicherheit reduziert mit der Homogenität des Ortsdosisfeldes.

²⁵ Durch Vergleich der Dosen in Schichten verschiedenen Abstands von der Oberfläche eines Ziegels mit dem Dosisverlauf, wie er sich für verschiedene Quellenenergien, -konfigurationen und -geometrien mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen errechnen lässt, kann die Annahme konkreter Quellenenergien, -konfigurationen und -geometrien überprüft werden.

6.2 Nachweisgrenze bei PPSL-Messungen in der retrospektiven Dosimetrie

Die Nachweisgrenze ist durch das Verhältnis des Messuntergrundes zur Größe der Messunsicherheit bestimmt. Die Nachweisgrenze ist somit mit der Messunsicherheit im sehr kleinen Dosisbereich verquickt. Da die Bestimmung von Unfalldosen die Bestimmung der Gesamtdosis sowie die Bestimmung der Altersdosis voraussetzt (siehe Kap. 2.5 und Kap. 6.1), ist, wie auch schon bei der Unsicherheit, zu unterscheiden zwischen der Nachweisgrenze der PPSL-Messung bezüglich der Bestimmung der Gesamtdosis (d.i. die Unfalldosis + die Altersdosis) und der Nachweisgrenze des gesamten Verfahrens bezüglich der Bestimmung einer Unfalldosis. Es ist dabei denkbar, dass die Nachweisgrenze bei Bestimmung der Gesamtdosis sehr klein, die kleinste als Unfalldosis feststellbare Größe aber vergleichsmäßig groß ist. Eine solche Situation tritt beispielsweise ein, wenn sich die Altersdosis nur mit großer Unsicherheit bestimmen lässt, das Unfallszenario nicht hinreichend bekannt und/oder, das Ortsdosisfeld sehr inhomogen ist.

In diesem Kapitel soll im ersten Abschnitt auf die Nachweisgrenze bei PPSL-Messung als ein Maß für die Güte der Methode eingegangen werden. In einem zweiten Abschnitt wird ein Überblick über sämtliche weitere Einflüsse auf die Nachweisgrenze bei Bestimmung der Unfalldosis gegeben.

6.2.1 Nachweisgrenze bei Verwendung der PPSL-Methode zur Bestimmung von Strahlendosen

In Ziegelsteinen, die in dieser Arbeit im Besonderen betrachtet werden sollen, treten im Wesentlichen zwei Minerale auf, die gegenüber Lumineszenz-Methoden empfindlich sind, Quarz und Feldspat. Zudem gibt es als weiteren gegenüber Lumineszenz empfindlichen Bestandteil die Kaolinit-Minerale. Diese sind ein Verwitterungsprodukt des Feldspates und treten in verschiedenen Erscheinungsformen auf. Über Lumineszenz-Eigenschaften können daher im Fall der Kaolinite kaum exakte Aussagen getroffen. Es kann aber davon ausgegangen werden, dass sie den Eigenschaften des Feldspates ähneln.

Auch der Feldspat tritt nicht in *einer* Erscheinungsform auf. Am häufigsten sind Orthoklas oder Kalifeldspat ($K[AlSi_3O_8]$) und Albit oder Natronfeldspat ($Na[AlSi_3O_8]$) zu finden. Sie besitzen eine sehr hohe Empfindlichkeit gegenüber dem Lumineszenz-

Nachweis von Strahlung. Wesentliche Lumineszenz-Eigenschaften sind daher gut bestimmt. Die sehr hohe Lichtausbeute, die mit Lumineszenz-Methoden bei ihnen erzielt werden kann, würde sie an sich zu bevorzugten Mineralen für Dosimetrie und Datierung machen, wenn nicht in vielen Fällen „anomales Fading“ (d.i. der nicht-thermische Informationsverlust innerhalb sehr kurzer Zeit (einige Tage)) aufträte. Eine weitere Problematik des Feldspates ist, zumindest im Falle des Orthoklas der Anteil an Kalium und somit an ^{40}K , das durch seinen Zerfall bei älteren Proben deutlich zur Altersdosis beiträgt und somit die Empfindlichkeit des gesamten Verfahrens reduziert (mehr dazu siehe Kap. 6.2.2).

Schließlich ist noch Quarz SiO_2 zu nennen. Er tritt in wohl definierter Erscheinungs- und Kristallform auf. Dies sowie die jegliche Abwesenheit des Effektes des anomalen Fadings machen ihn zum bevorzugten Mineral für Dosimetrie und Datierung. Die Ausbeute an Licht, die bei gleicher Dosis zu erzielen ist, ist allerdings erheblich kleiner als die des Feldspates. Somit bleibt seine die Nachweis- und Erkennungsgrenze, die mit ihm zu erreichen ist, hinter der des Feldspates zurück. Zudem wird die Empfindlichkeit der Dosisbestimmung auf Grundlage von Quarz dadurch gemindert, dass sich durch Erhitzen des Materials die Lichtausbeute aus den einzelnen Fallen erhöht. Man spricht von „Sensitivierung“. Dies schließt die Anwendung der Regenerativ-Methode aus. Die Anwendung der Additiv-Methode dagegen führt gegenüber der Regenerativ-Methode, wie in Kap. 6.1.2 ausgeführt, generell zu größeren Unsicherheiten und somit zwangsläufig zu einer höheren Nachweisgrenzen.

6.2.2 Weitere Einflüsse auf die Nachweisgrenze bei Bestimmung von Unfalldosen

Die Nachweisgrenze der Methode zur Bestimmung der Unfalldosen ist über die in Kap. 6.2.1 genannten Einflüsse hinaus noch wesentlich abhängig von der Bestimmung der Altersdosis. Die Unsicherheiten, die bei deren Bestimmung auftreten, reduzieren die Nachweisgrenze der gesamten Methode. Diese Reduktion ist jedoch minimal, wenn die Altersdosis sehr klein, d.h. die Probe sehr jung ist. Der Anteil der Altersdosis kann zudem reduziert werden, wenn die Abschätzung der Gesamtdosis mittels PSL oder PPSL auf Grundlage des Quarzanteils des Ziegels gemacht wird. In diesem Fall nämlich ist es möglich, durch geeignete Probenaufbereitung die Altersdosis um den Anteil, der durch α -

Strahler verursacht wird, zu reduzieren. Die Verwendung des Quarzanteils allerdings zieht den Nachteil der Notwendigkeit der Additiv-Methode und somit der von Haus aus höheren Unsicherheit nach sich (vgl. Kap. 6.1.2). Außerdem liegt nicht in jeder Probe notwendigerweise ein hinreichend großer Anteil an Quarz in der passenden Korngröße vor.

Zudem wird die Nachweisgrenze der Methode zur Bestimmung von Unfalldosen von der Art des angenommenen Ortsdosisfeldes beeinträchtigt. Bei einem Ortsdosisfeld, das als relativ homogen angenommen werden darf, ist die Unsicherheit der Abschätzung der Unfalldosis im Wesentlichen durch die Unsicherheit der Bestimmung der Gesamtdosis durch PSL- oder PPSL-Methoden sowie durch die Unsicherheit bei der Bestimmung der Altersdosis bestimmt. Wenn jedoch diese Annahme nicht getroffen werden darf (z.B. im Falle eines durch eine Punktquelle verursachten Unfalls), ist die Unsicherheit bei Abschätzung der Unfalldosis noch in einem von dem Ausmaß der Inhomogenität abhängigen Maß beeinträchtigt.

Wenn schließlich eine Abschätzung nicht bloß des Ortsdosisfeldes zu treffen ist, sondern auch auf Personendosen exponierter Personen geschlossen werden soll, ist die Nachweisgrenze dieser Abschätzung über alle oben genannten Einflussgrößen hinaus von der Verweildauer und dem Verweilort der Betroffenen im Strahlungsfeld abhängig.

6.3 Zusammenfassende Betrachtung

Zusammenfassend kann nun gesagt werden, dass eine generelle Aussage über Unsicherheiten und Nachweisgrenze bei der Abschätzung von Unfalldosen mittels der PPSL-Methode nicht möglich ist. Beide hängen vielmehr von den Gegebenheiten in jedem Einzelfall ab. Als Hauptkriterien können aber dennoch folgende Faktoren, deren Kombination für Unsicherheit und Nachweisgrenze die entscheidende Rolle spielt, genannt werden:

- Höhe der Unfalldosis
- Alter des jeweiligen Probenmaterials

Ist beispielsweise die **Unfalldosis klein gegenüber der Altersdosis** oder in derselben Größenordnung wie diese (d.h. kleine Unfalldosis / alte Probe), so spielt die Unsicherheit, mit der die Altersdosis bestimmt werden kann, die entscheidende Rolle. Somit gehen als wichtige Parameter in die Unsicherheitsanalyse die Exposition des Probenmaterials gegenüber natürlichen Strahlern ein, im ganz Besonderen die Exposition durch die Radionuklide, die im Ziegel selbst enthalten sind. Wenn nun das Probenmaterial in auswertbaren Mengen in den passenden Korngrößen Quarz und Feldspat enthält, was nicht notwendigerweise sein muss, muss trotzdem im Einzelfall entschieden werden, ob eine Dosisabschätzung basierend auf Quarz (was den Vorteil der Elimination des Anteils der Altersdosis durch im Probenmaterial eventuell vorhandene α -Strahler durch geeignete Probenaufbereitung, aber den Nachteil der notwendigerweise angewandten Additiv-Methode mit sich bringt) oder eine Dosisabschätzung basierend auf Feldspat (was den Vorteil der Möglichkeit der Anwendung der Regenerativ-Methode, aber den Nachteil des erhöhten Beitrags der Altersdosis durch α -Strahler mit sich bringt) geringere Unsicherheiten und verbesserte Nachweisgrenze birgt.

Wenn andererseits die **Unfalldosis groß gegenüber der Altersdosis** ist (d.h. große Unfalldosis / junge Probe), so spielt die Unsicherheit mit der die Gesamtdosis bestimmt werden kann, die entscheidende Rolle. In diesem Fall ist die Dosisabschätzung basierend auf Feldspat vorzuziehen – jedenfalls, soweit das Problem des Fadings eliminiert werden kann. Dies bringt den Vorteil der Möglichkeit der Anwendung der Regenerativ-Methode sowie die Tatsache, dass der Beitrag durch α -Strahler zur Altersdosis nicht allzu groß sein kann, mit sich.

Unabhängig von diesen Erwägungen spielt für die Unsicherheit der Abschätzung eines Ortsdosisfeldes und somit für die Nachweisgrenze dieser Abschätzung in jedem Fall noch das angenommene Unfallszenario eine große Rolle: Kann von einem homogenen Strahlenfeld ausgegangen werden, so ist für relativ kleine Unsicherheit bzw. relativ niedere Nachweisgrenze die Auswertung einiger weniger Proben ausreichend. Handelt es sich jedoch bei dem den Unfall verursachenden Strahler um eine Punktquelle, so sind, um das Ortsdosisfeld mit der gleichen Unsicherheit und Nachweisgrenze abzuschätzen, erheblich mehr Proben von unterschiedlichen Probenorten erforderlich.

All diese Faktoren tragen zur Bestimmung der Unsicherheit und zur Nachweisgrenze der Methode bei. Dies zu illustrieren, seien zwei Beispiele genannt:

6.3.1 Die Abschätzung der radiologischen Belastung der Bevölkerung des Altaigebirges durch die Kernwaffenversuche der Sowjetunion

Bei den Kernwaffenversuchen der Sowjetunion am Testgelände bei Semipalatinsk wurden infolge der Explosionen freiwerdende Radionuklide durch den Wind verweht und führten somit möglicherweise zu Belastungen der Bevölkerung im entfernten Altaigebirge.

Aufgrund der Entfernung von 200km bis 300km und der damit einhergehenden Ausdünnung der Radionuklide in der Luft ist von sehr geringen Dosen auszugehen (Größenordnung: 100mGy). Dem gegenüber sind die Häuser, aus denen ggf. Proben entnommen werden könnten, oftmals relativ alt (50 bis 70 Jahre), sodass der im Verhältnis sehr kleinen Unfalldosis eine Altersdosis von 200mGy bis 350mGy gegenüber steht. Dies führt bei der Abschätzung der Unsicherheit der Unfalldosis zu einer hohen Abhängigkeit von der Unsicherheit, mit der die Altersdosis bestimmt werden kann.

Es ist somit eine große relative Unsicherheit bei der Abschätzung der Unfalldosis zu erwarten, die aber durch die Homogenität, die vom Ortsdosisfeld angenommen werden darf, nicht zusätzlich erhöht wird.

6.3.2 Die Abschätzung der Unfalldosen im Falle des radiologischen Unfalls von Kiisia (Estland)

Im Falle des radiologischen Unfalls von Kiisia wurde eine radioaktive Quelle entwendet und befand sich über den Zeitraum einiger Wochen in einem Privathaushalt. Dabei wurden die Bewohner des Hauses mit Dosen von einigen Gy belastet. Zur Ermittlung dieser Dosen wurden verschiedene keramische Materialien von verschiedenen Punkten des Hauses als Proben genommen und mit Lumineszenz-Methoden (vornehmlich TL) gemessen.

Die Proben waren – das Haus war zum Unfallzeitpunkt ca. 30 Jahre alt – relativ jung und die damit verbundene Altersdosis von ca. 150mGy ist gegenüber einer Unfalldosis von mehreren Gy relativ gering. Somit ist die Unsicherheit der Abschätzung der Unfalldosis maßgeblich von der Unsicherheit der Bestimmung der Gesamtdosis mittels Lumineszenz-Methoden abhängig, sodass eine kleine relative Unsicherheit zu erwarten ist.

Allerdings ist, aufgrund der Tatsache, dass es sich bei dem den Unfall verursacht habenden Strahler um eine Punktquelle handelte, das Ortsdosisfeld als stark inhomogen

anzunehmen. Dies führt zu einer erheblichen Steigerung der relativen Unsicherheit, mit der das Ortsdosisfeld oder, mehr noch, effektive Dosen für einzelne Personen abgeschätzt werden.

Diese beiden Beispiele machen deutlich, wie sehr die Unsicherheitsanalyse und, damit verbunden, die Nachweisgrenze der Methode von dem einzelnen Ereignisfall abhängt. Eine pauschale Aussage kann somit nicht möglich sein. Es muss stets den Besonderheiten des Einzelfalls nachgegangen werden.

7. Diskussion und Ausblick

7.1 Zusammenfassung der Ergebnisse

Das generelle Ziel der Arbeit war, ein Messverfahren unter Verwendung von grobkeramischen Produkten als Probenmaterialien zu erarbeiten, mit dem möglichst kleine Strahlendosen ermittelt werden können. Das zu erarbeitende Messverfahren sollte somit nach Möglichkeit zu einer verbesserten Nachweisgrenze führen. Durch die Möglichkeit der Messung von Dosen im Bereich $<1\text{mGy}$ ergibt sich eine neue, alternative Möglichkeit der Bestimmung der Altersdosis (vgl. Fußnote 1, S. 1, sowie Kap. 1.2). Diese setzt eine gewisse Lagerzeit von 1-2 Monaten voraus, während der sich ein Dosisbeitrag aufgrund der natürlichen Strahlenexposition aufbaut. Zwar macht die Lagerdauer die Methode in der Unfalldosimetrie für die akute Dosisbestimmung bei zu vermutenden hohen Strahlendosen untauglich, dennoch bietet sie eine gute und einfache Alternative stets dann, wenn keine rasche Dosisbestimmung erforderlich ist. Beispielsweise bei geringen Expositionen oder für epidemiologische Studien, bei denen das die Dosis verursachende Ereignis weit zurückliegt. Um dem Ziel der verbesserten Nachweisgrenze nachzukommen, fand als geeignete Messmethode die Methode der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz Verwendung.

Zudem sollte untersucht werden, ob und inwieweit sich die gefundenen Messparameter auf die Messung weiterer Proben übertragen lassen, bzw. ob sich ein standardisiertes Messverfahren (d.h. ein Messverfahren mit definierten Messparametern, deren Verwendung für jede beliebige Probe zu einem optimalen Ergebnis führen) angeben lässt, oder ob der günstigste Satz an Messparametern in jedem Fall neu bestimmt werden muss.

Aus diesem Ansatz ergaben sich folgende Teilschritte:

1. Zunächst stellte sich die Frage nach dem „richtigen Stimulationslicht“: Aufgrund des Wunsches, die Nachweisgrenze zu senken, d.h. möglichst kleine Signale messen zu können, aus der Kenntnis der generellen Struktur grobkeramischer Produkte – nämlich der Zusammensetzung aus (im Wesentlichen) Quarz, Feldspat und Kaoliniten, wobei von Feldspat aus der Literatur bekannt ist, dass er in Bezug auf Lumi-

neszenzerscheinungen unter den drei genannten am leuchtstärksten ist, und zudem Quarz nicht in zwingend in der geeigneten Korngröße vorliegen muss – fiel die Wahl auf Feldspat als den für dosimetrische Messungen am geeignetsten erscheinenden Bestandteil grobkeramischer Produkte. Damit lag ebenfalls die geeignete Photonenenergie für das Stimulationslicht fest: ca. 1,2eV (= Licht der Wellenlänge von ca. 900nm – infrarot).

2. Als weiteres Teilziel galt es, die Messparameter zu optimieren. Dabei stellte sich zunächst die Frage, ob die in der retrospektiven Dosimetrie notwendigen Vergleichsmessungen an ein und derselben Probe möglich sind oder ob dazu Messungen an verschiedenen Teilproben erforderlich sind. Es stellte sich für die untersuchten Proben heraus, dass der günstigere Fall der Messung von mehreren Vergleichsbestrahlungen an ein und derselben Probe möglich ist (*Single-Aliquot-Verfahren*).

Als weiterer wichtiger Schritt des Messverfahrens war ein geeignetes Vorheizverfahren zur Elimination zeitlich unbeständiger Signale zu bestimmen; es stellte sich ein Heizen der Probe bei 160°C über 150s für alle Proben als geeignet heraus.

Da im *Single-Aliquot-Verfahren* sichergestellt sein muss, dass das Signal der vorhergehenden Bestrahlung bei der darauffolgenden Bestrahlung tatsächlich gelöscht ist, war es schließlich von Bedeutung, ein Verfahren zu finden, etwaige Restsignale zu löschen. Dabei stellte sich das Löschen durch Beleuchten mit Licht als ein zu langwieriges und einer Standardisierung widerstrebendes Verfahren dar. Es zeigte sich jedoch, dass ein Löschvorgang mittels Wärme der Messung nicht entgegenstand und so wurde für diesen Löschvorgang ein Heizen der Probe auf 450°C über 120s als optimal gefunden. Allerdings erscheint es in jedem Fall ratsam, den Erfolg dieses Heizvorganges durch Messwiederholung zu prüfen.

3. Die zentrale Frage galt der Nachweisgrenze, die mit dem entwickelten Messverfahren zu erreichen ist. Es zeigte sich, dass hier die Proben je nach Herkunft unterschiedlich reagierten: Die Ziegel des niederbayerischen Tertiärhügellandes zeigten Nachweisgrenzen von 500µGy bis hin zu 6mGy (Interpretation vgl. Kap. 7.2). Dabei zeigte die Hälfte der untersuchten Proben Nachweisgrenzen von deutlich unter 1mGy. Dies ist zwar nicht ganz so gut wie erhofft, eine Bestimmung der Altersdosis ist mit Lagerzeiten von 2 Monaten aber immer noch möglich. Auch die Proben mit Nachweisgrenzen über 1mGy stellen eine Verbesserung der bisherigen Nachweisgrenze von einer ganzen Größenordnung dar, eignen sich aber nicht mehr für eine vereinfachte Bestimmung der Altersdosis.

Die Kontrollproben mit Herkunft außerhalb des niederbayerischen Tertiärhügellandes (Allgäu, Peine) zeigen erheblich größere Nachweisgrenzen, z.T. größer als im Rahmen der vorliegenden Messungen festzustellen war ($> 70\text{mGy}$; Interpretation vgl. Kap. 7.2).

4. In einem letzten Schritt war die Lebensdauer des Messsignals zu bestimmen. Sie ist überaus wichtig für die Anwendbarkeit und Grenzen der erarbeiteten Messmethode. Dies ist hier im Besonderen zu prüfen, da eine Vielzahl von Messungen anhand von Feldspäten in Sedimenten in der Literatur bestätigt sind, die ein sog. „anomales Fading“ aufweisen. Darunter ist der nicht durch thermische Anregung verursachte Signalverlust innerhalb kurzer Zeit (einige Tage bis einige Monate) zu verstehen. Dieser Effekt tritt nur in einem Teil aller Fälle auf. Der physikalische Mechanismus, der hinter diesem Phänomen steht ist noch nicht eindeutig erklärt. Wenn der Effekt auftritt, kann dies einen signifikanten Signalverlust während der Zeitdauer zwischen Strahlenexposition und Messung bedeuten. Die Vergleichbarkeit mit den notwendigen Vergleichsbestrahlungen ist dann nicht mehr gegeben. Daher ist die Prüfung auf diesen Effekt essentiell, da sein Auftreten eine Anwendung des erarbeiteten Messverfahrens in der retrospektiven Dosimetrie unmöglich machen würde. Es zeigte sich aber, dass der Effekt bei keiner Probe weder im Zeitraum von Tagen noch von 2 Monaten festzustellen war.

Die Untersuchungen, die zu diesen Ergebnissen und zu den in Kap. 7.2 dargelegten, für die retrospektive Dosimetrie bedeutungsvollen Schlussfolgerungen führten, wurden erstmals systematisch durchgeführt.

Die Frage nach der Möglichkeit, ein standardisiertes Messverfahren zu entwickeln, konnte durch die oben beschriebenen Experimente positiv beantwortet werden. Darüber hinaus konnten Messungen weiterer physikalischer Eigenschaften (Farbe, Härte, TL-Eigenschaften) eine Vergleichbarkeit der Proben aus dem niederbayerischen Tertiärhügelland belegen, die keine Übereinstimmung mit den Proben aus dem Allgäu bzw. aus Peine fand (Interpretation vgl. Kap. 7.2).

Das entwickelte Messverfahren trägt zur Verbesserung der bekannten Lumineszenzverfahren zur Ermittlung eines *Ortsdosisfeldes* (Energiedosen) bei. Die Ermittlung von *Personen-* oder *Organdosen* daraus war zwar nicht der primäre Gegenstand der vorliegenden Arbeit, das notwendige Vorgehen mit all seinen Schwierigkeiten wurde dennoch in Kap. 6 skizziert.

7.2 Schlussfolgerungen

Als wesentliches Ergebnis der vorliegenden Arbeit konnte ein Messverfahren zur Bestimmung von Strahlendosen anhand von grobkeramischen Materialien und unter Verwendung der PPSL-Methode entwickelt werden.

Es zeigte sich, dass dieses Verfahren als standardisiertes Verfahren Anwendung finden kann. Dies liegt an der Wahl PPSL als Messmethode: Durch die hier gewählte Art der Untergrundunterdrückung ist das Messverfahren unabhängig von der Dauer der Stimulation. Diese musste für die bisher gängige Art der Untergrundermittlung, dem sog. „late-light-Verfahren“ (vgl. Kap. 2.3.4.1), stets lange genug gewählt werden, um sicherzustellen, dass kein dosisabhängiges Signal mehr registriert wurde. Dies verlangt in vielen Fällen eine Einzelfallbetrachtung der Messkurven.

Für die Messung zeigte sich somit das Messgerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“ in all seinen Eigenschaften als ein vorzügliches Instrument, das nicht nur für den Zweck, für den es geschaffen wurde – Überprüfung von Lebensmitteln auf eventuelle Bestrahlung –, beste Dienste leistet, sondern auch für die retrospektive Dosimetrie anhand grobkeramischer Materialien.

Auch zeigte sich durch den vielfältigen Satz an Messproben, dass sich das Messverfahren generell für moderne Mauerziegel einsetzen lässt, unabhängig von Art und Herkunft der Ziegel. Die Übereinstimmung in den dosimetrischen Eigenschaften der Proben, die sich trotz der breiten Varietät an möglichen Rohstoffzusammensetzungen zeigte, wird als ein Ergebnis einer über alle Proben homogenen Korngrößenverteilung und in modernen Ziegeleibetrieben weitgehend vergleichbaren Brennprozeduren gedeutet. Die homogene Korngrößenverteilung resultiert aus konkreten, in DIN-Normen festgelegten Anforderungen an moderne Mauerziegel. Bei der Brennprozedur kann die Brenntemperatur von Ziegelei zu Ziegelei um bis zu 100°C schwanken (in der Regel zwischen 900°C und 1000°C, abhängig von der mineralogischen Zusammensetzung des Rohmaterials). In diesem Temperaturbereich sind aber keine chemischen, mineralogischen oder kristallinen Änderungen von Feldspat bekannt, ein Einfluss auf die dosimetrischen Eigenschaften des Feldspatanteils wird daher weder erwartet noch nachgewiesen. In Brenn- und Trockendauer weichen die Ziegeleien nur geringfügig von einander ab.

Die bei der Untersuchung der Nachweisgrenze gefundenen Übereinstimmungen innerhalb der ziegeleitechnisch geschlossenen Region „Niederbayerisches Tertiärhügel-

land“, bzw. die Unterschiede zu den Vergleichsproben aus dem Allgäu und aus Peine in Norddeutschland werden als Indiz gewertet, dass die Nachweisgrenze mit der Herkunft der Proben in direktem Zusammenhang steht. Dabei kann die sehr niedere Nachweisgrenze der Proben des Niederbayerischen Tertiärhügellandes mit einem hohen Anteil von Feldspat in den Rohmaterialien interpretiert werden. Dies lässt sich mit der Tatsache begründen, dass es sich bei dem Rohstoff der Proben aus dem Niederbayerischen Tertiärhügelland weitestgehend um Löss handelt. Dessen Herkunft liegt wohl zu einem großen Anteil in den Grundmoränen und Sandergebiete²⁶ des Ammergletschers, des Isar-Loisach-Gletschers und des Inn-Gletschers der Würmeiszeit. Diese Gletscher kamen direkt aus dem Bereich des Hauptalpenkammes, einer Region, die im Wesentlichen aus Granit besteht und damit feldspatreich ist.

Entsprechend lässt sich die hohe Nachweisgrenze der Proben aus dem Allgäu mit der weiter westlich gelegenen Herkunft und den damit verbundenen feldspatarmen Lössen als Rohstoff begründen. Zwar sind auch diese würmeiszeitlichen Ursprungs, jedoch liegt die Herkunft dieser Lössen in den Grundmoränen und Sandergebiete des Lech- und des Rhein-Gletschers. Diese aber haben, bevor sie das Voralpenland erreicht haben, einen breiten Streifen Flysch überstrichen. Flysch aber ist eine sehr alte Gesteinsform, in der der Feldspat-Anteil weitgehend verwittert ist.

Auch die noch höhere Nachweisgrenze der Probe aus Peine, Norddeutschland, lässt sich so deuten: das Probenmaterial hat seine Herkunft in den Börden, einer Region in der der Sandanteil, d.h. weitgehend Quarzanteil, im grobkörnigen Anteil der Böden überwiegt.

Insgesamt lässt sich sagen, dass mit der erarbeiteten Messmethode Nachweisgrenzen im Dosisbereich von weniger als 1mGy erreicht werden können, allerdings nur in einzelnen Regionen, während die Nachweisgrenzen in anderen Regionen bei deutlich höheren Werten liegen. Dieser Sachverhalt wird als eine Folge unterschiedlicher Feldspatgehalte in den Böden und somit im Rohmaterial für die Ziegelproduktion interpretiert. Die Feldspatgehalte sind geologisch bedingt und weisen somit einen regionalen Trend auf. Die Ergebnisse lassen sich als starke Hinweise darauf interpretieren, dass die Größenordnung der Nachweisgrenze von der Region abhängt, aus der die Probe stammt und nicht von Probe zu Probe variiert. Dies bedeutet, dass sich die in Kap. 1.2 dargestellte vereinfachte

²⁶ Sandergebiete = „flache, oft weit ausgedehnte, fächerförmige Schotter- und Sandfläche, am Außenrand der Endmoränen durch Gletscherschmelzwässer abgelagert“ [BROCKHAUS BAND 19, 1984].

Methode der Bestimmung der Altersdosis realisieren lässt. Dies gilt zwar nicht generell, wohl aber für Regionen, deren Proben sich durch niedere Nachweisgrenze auszeichnen.

7.3 Ausblick

Wenn auch in der vorliegenden Arbeit ein Messverfahren ermittelt werden konnte, das sich sowohl für die Standardisierung eignet, als auch – abhängig vom jeweiligen Probenmaterial – Messungen von Strahlendosen im Dosisbereich unter 1mGy zulässt, so wäre dennoch für eine breit angelegte Messkampagne eine Weiterentwicklung des Messgerätes wünschenswert: Derzeit ist zu einem Zeitpunkt die Messung von jeweils nur einer Probe möglich. Bei einer Vielzahl von Messungen, mit der in einem Ereignisfall zu rechnen ist, wäre es praktisch, wenn das Messgerät nach dem Vorbild bereits realisierter TL- und PSL-Geräte, wie z.B. denen der Fa. Risø National Laboratories oder dem der Fa. ELSEC, automatisiert betrieben werden könnte (d.h. mit einem Probenwechsler für die Möglichkeit mehrerer Proben).

Bzgl. der Nachweisgrenze fanden sich Hinweise für eine regionale Abhängigkeit von der Herkunft des Probenmaterials. Eine Interpretation für die gewonnenen Messergebnisse – die Nachweisgrenze steht in unmittelbarem Zusammenhang mit dem Feldspatgehalt der Böden; dieser wiederum ist geologisch bedingt – konnte gegeben werden. Sie impliziert eine zumindest qualitative Vorhersagbarkeit der Nachweisgrenze (hoch/niedrig?) und bekommt somit Bedeutung sowohl für die Planung einer Messung als auch für die Überprüfung von Messergebnissen. Die zu erwartende Nachweisgrenze für den Raum des niederbayerischen Tertiärhügellandes konnte auf einen Wertebereich von 500 μ Gy bis hin zu wenigen mGy bestimmt werden. Für das generellen Bestreben, im Rahmen des Strahlenschutzes für die Allgemeinbevölkerung die Nachweisgrenze in der retrospektiven Dosimetrie zu senken, wäre es nun wünschenswert, den analogen Dosisbereich auch für weitere ziegeltechnisch geschlossene Gebiete Deutschlands wie z.B. das sächsische Vorland oder die westfälische Bucht zu bestimmen. Die Untersuchung hätte mit den hier aufgezeigten Methoden zu erfolgen und brächte für jeden konkreten Ereignisfall in einer dieser Regionen bereits vor einer Messung Aufschluss über mögliche Grenzen der Messmöglichkeiten und eine Entscheidungshilfe in der Frage der Bestimmung der Altersdosis.

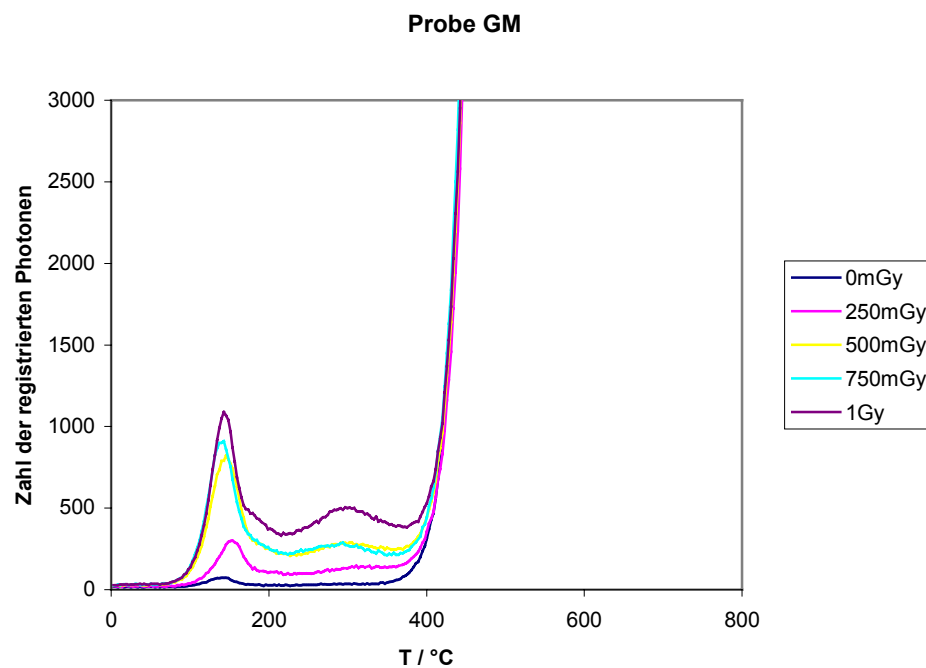
Anhang

A 1. Glowkurven, Ausleuchtkurven und Messauswertungen

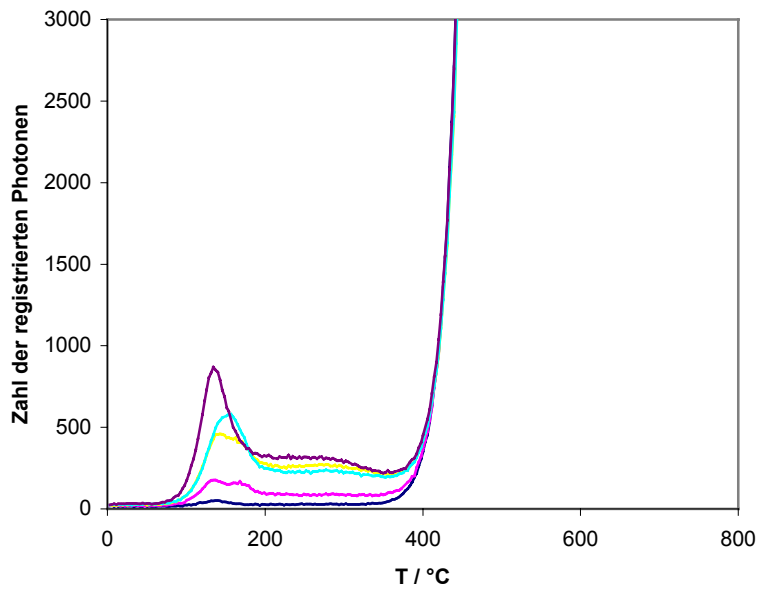
A 1.1. Zum Kap. 5.1: Vorversuche: Probeneigenschaften gegenüber Thermolumineszenz

A 1.1.1 Gemittelte Glowkurven sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Abhängigkeit des Messsignals von der Probentemperatur

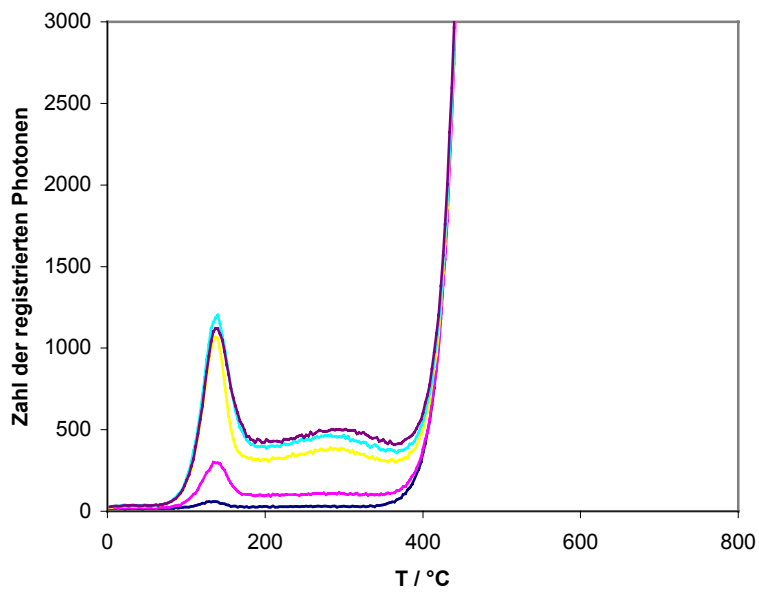
Im vorliegenden Anhang A 1.1.1 werden die gemittelten Glowkurven sämtlicher untersuchter Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) zur Überprüfung der Abhängigkeit des Messsignals von der Probentemperatur dargestellt. Es handelt sich um die zur Abb. 22 korrespondierenden Darstellungen.



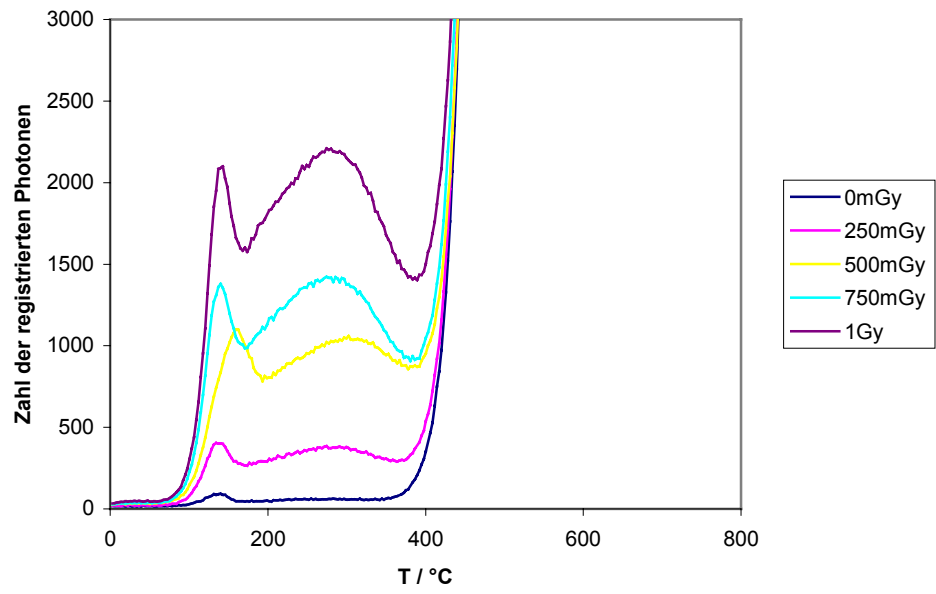
Probe HHDI



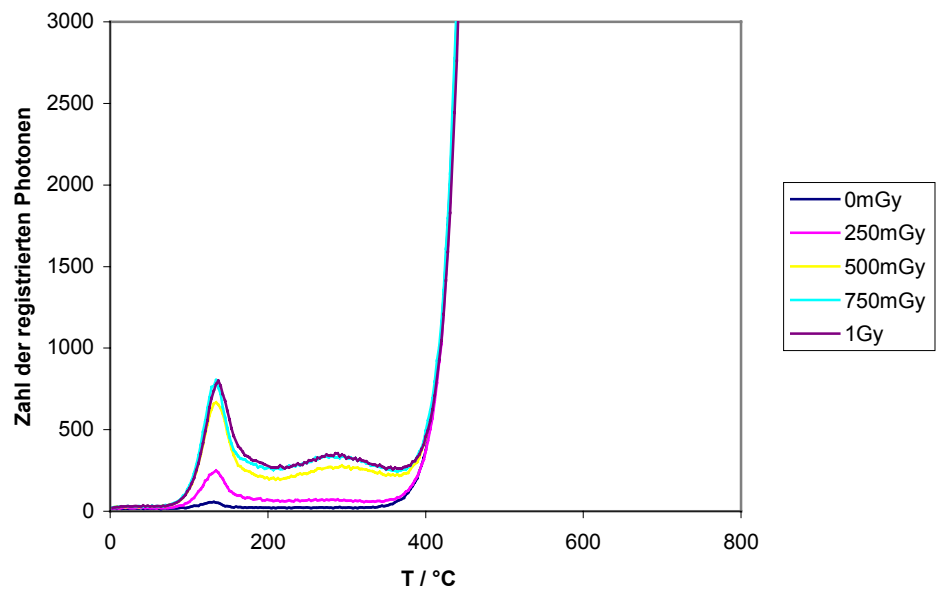
Probe AK



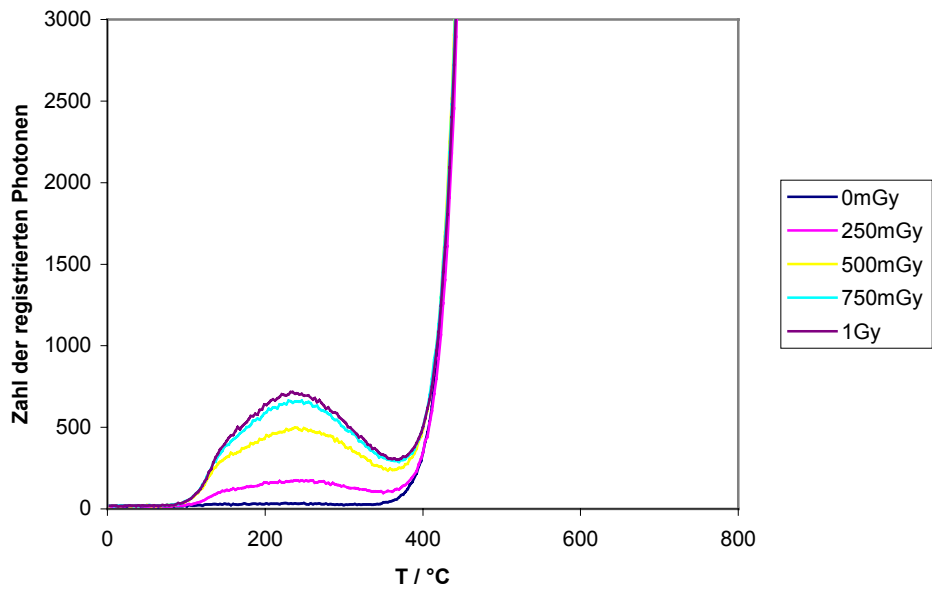
Probe LBB



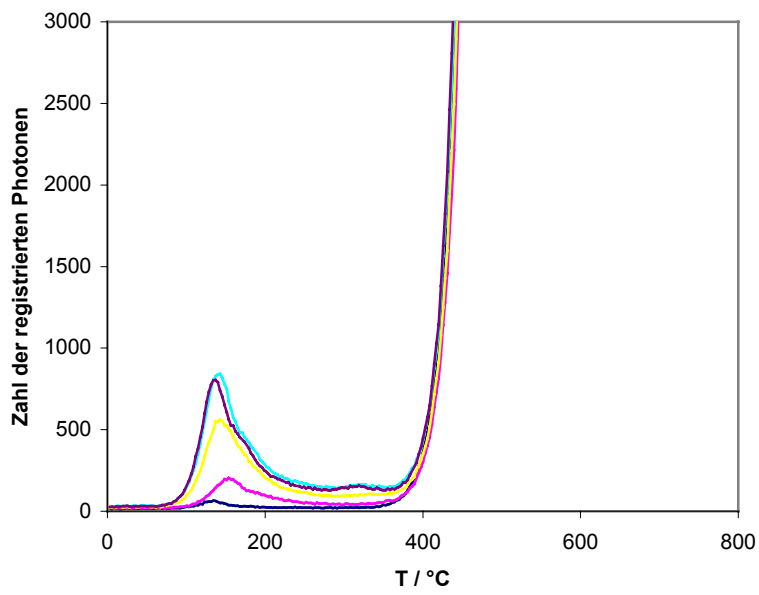
Probe Z



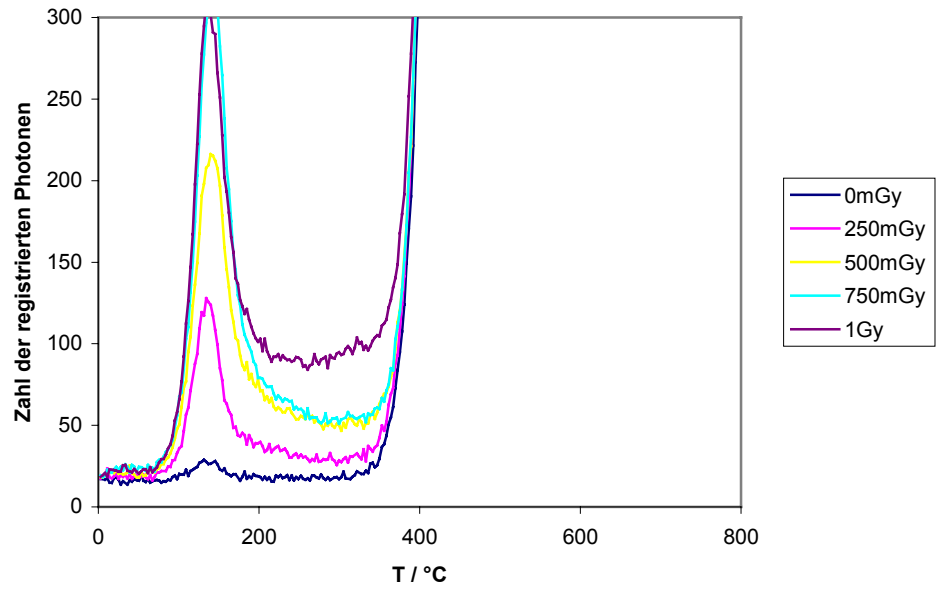
Probe Aich



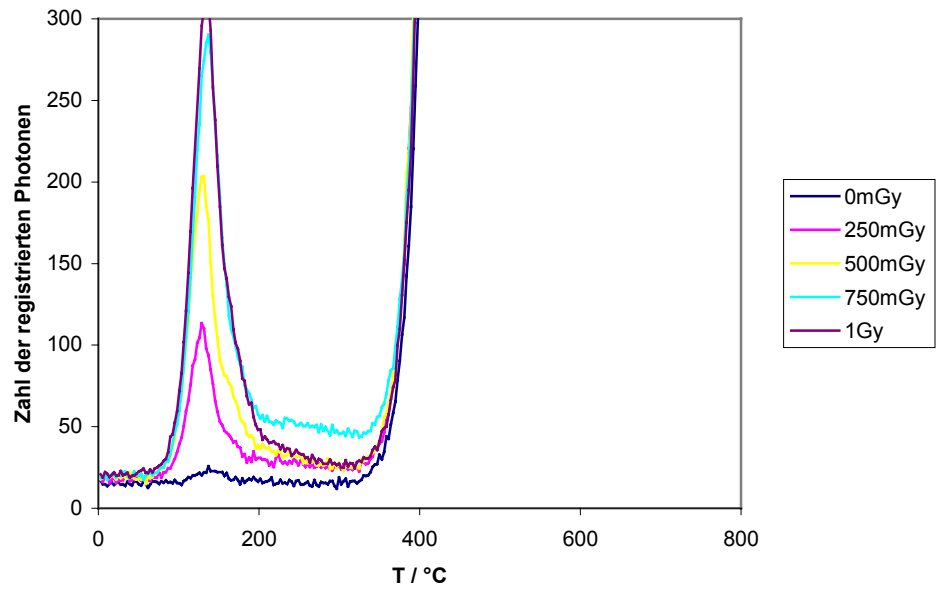
Probe ASMO



Probe KB



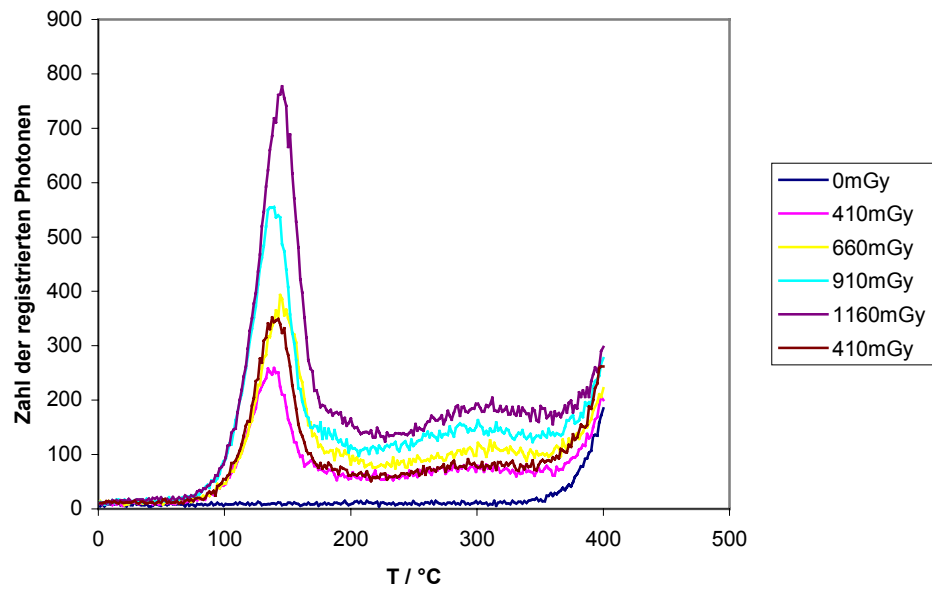
Probe P



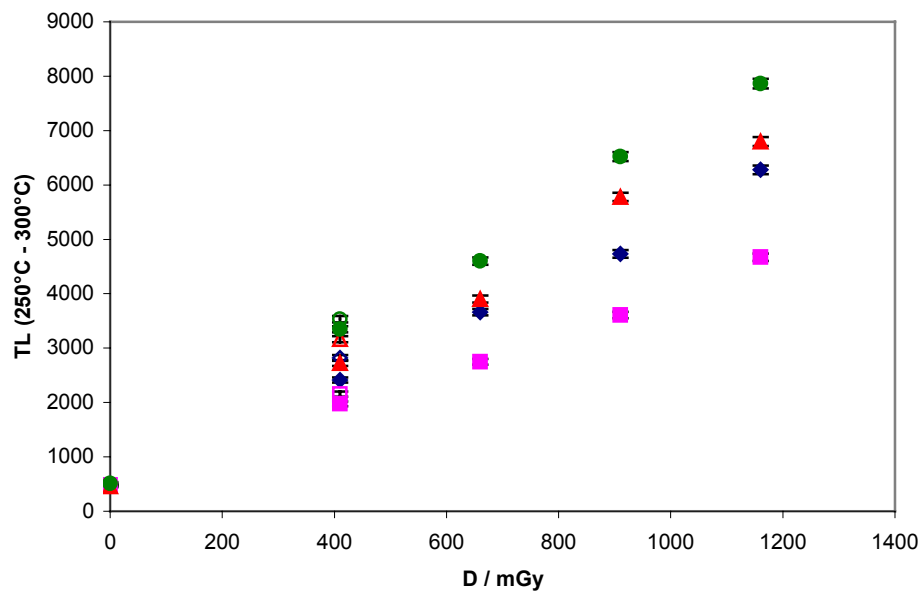
A 1.1.2 Repräsentative Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und TL-Messung

Im vorliegenden Anhang A 1.1.2 werden repräsentative Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) zur Überprüfung der Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und TL-Messung dargestellt. Es handelt sich um die zu den Abb. 23 und 24 korrespondierenden Darstellungen.

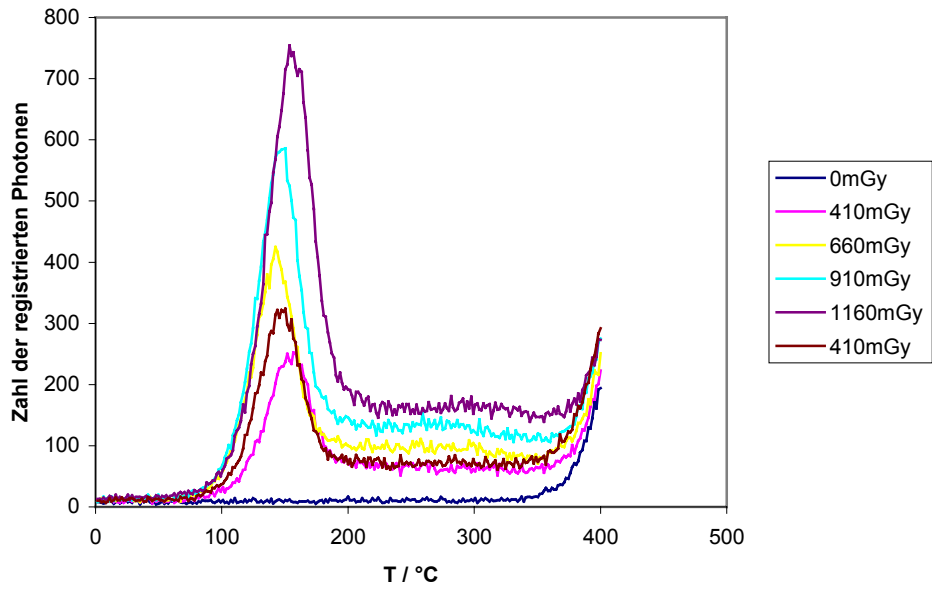
Probe GM, Teilprobe 4



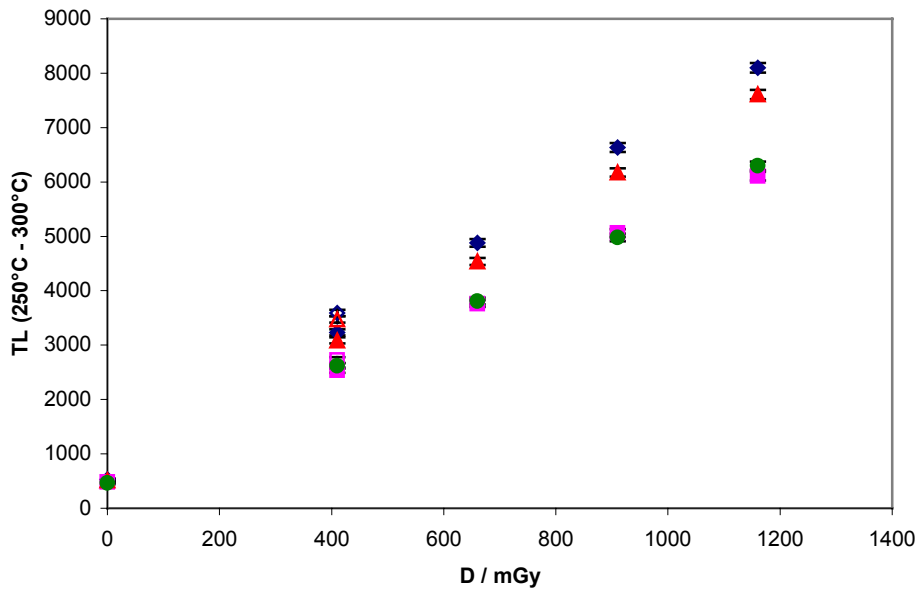
Probe GM, 4 versch. Teilproben



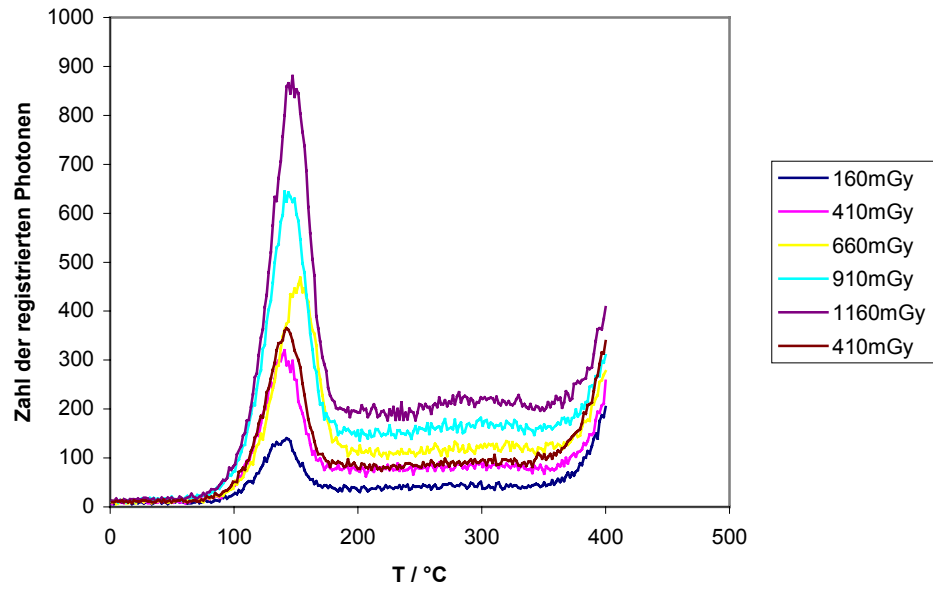
Probe HHDI, Teilprobe 1



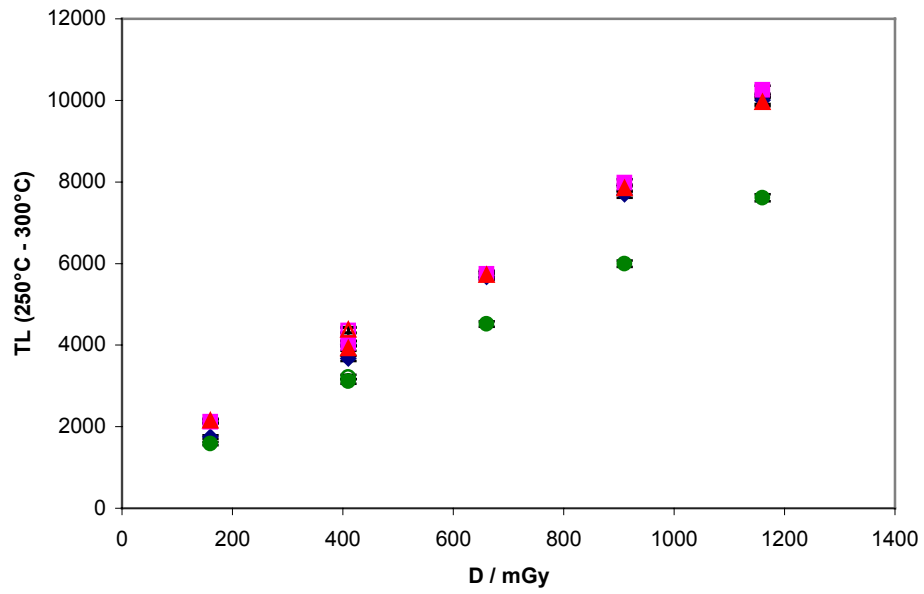
Probe HHDI, 4 versch. Teilproben



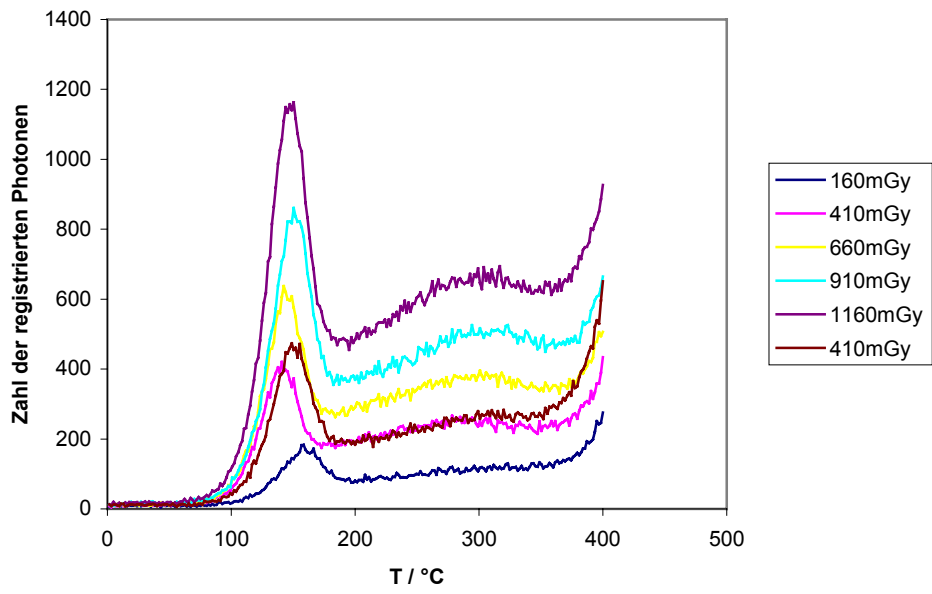
Probe AK, Teilprobe 2



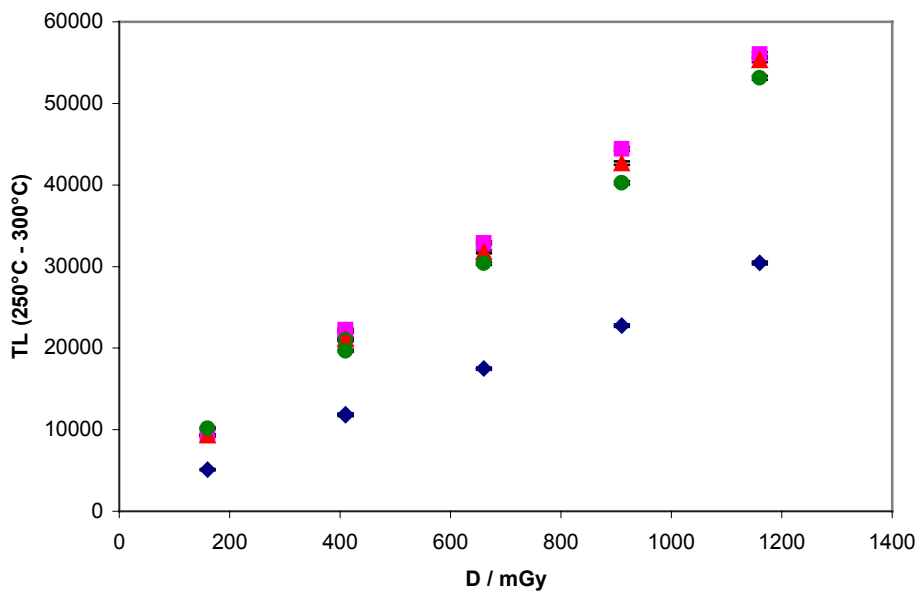
Probe AK, 4 versch. Teilproben



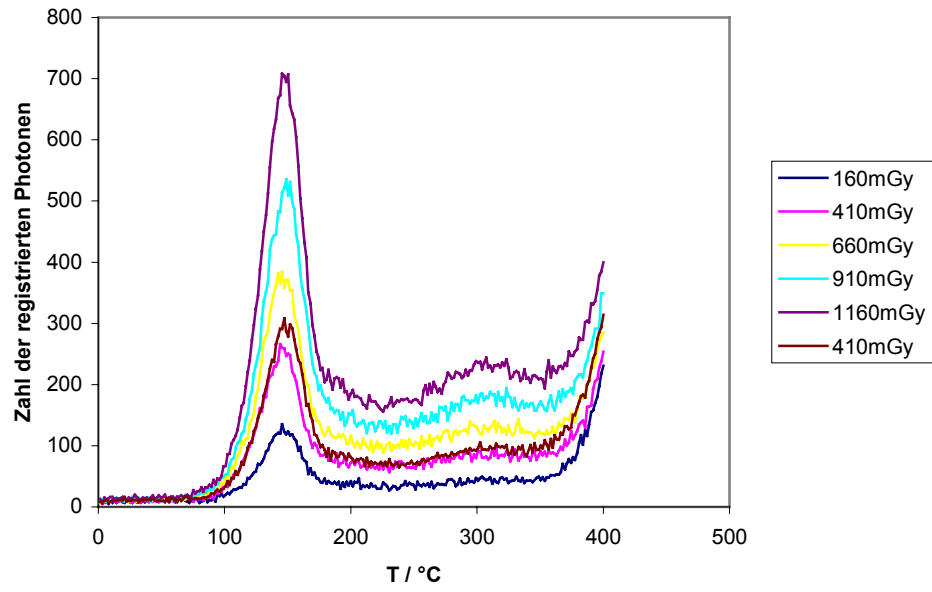
Probe LBB, Teilprobe 1



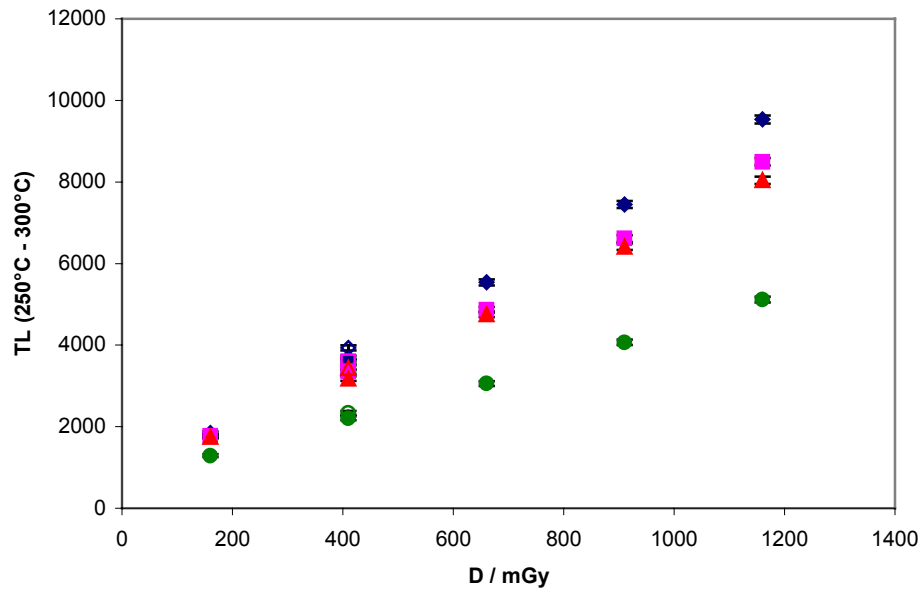
Probe LBB, 4 versch. Teilproben



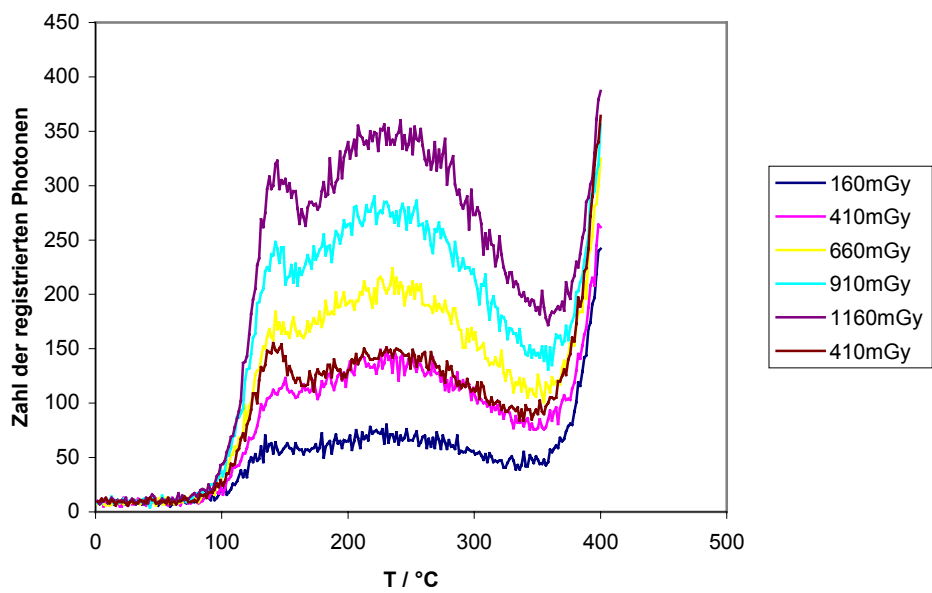
Probe Z, Teilprobe 1



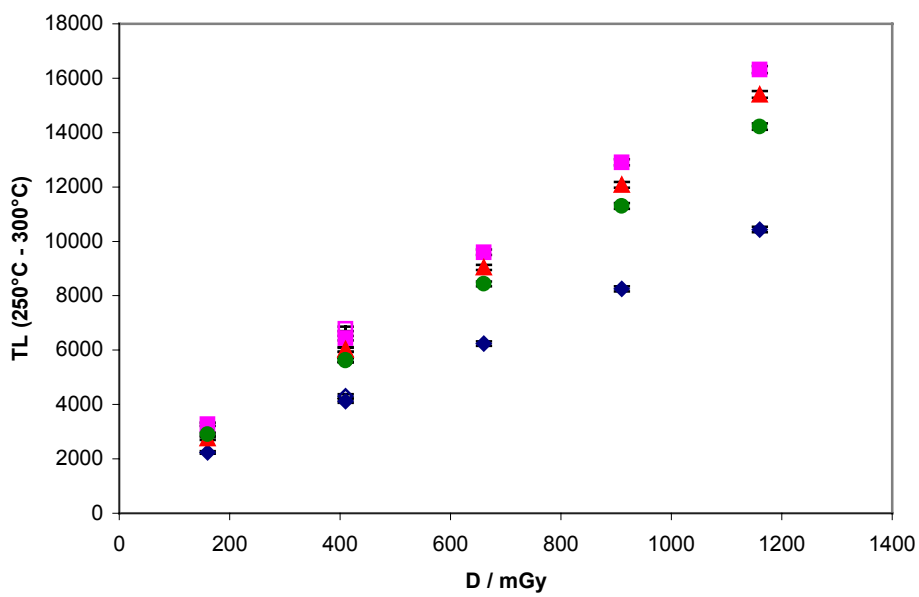
Probe Z, 4 versch. Teilproben



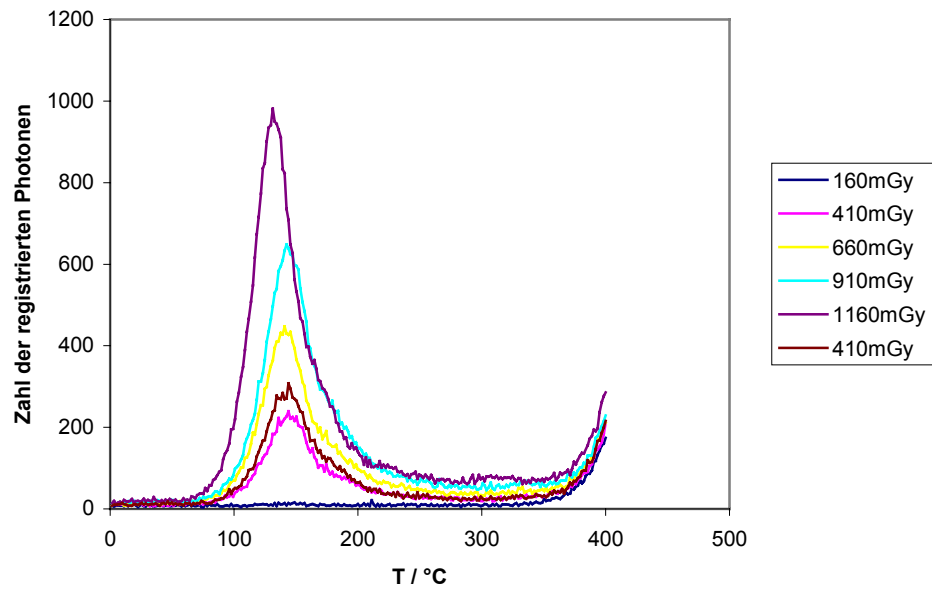
Probe Aich, Teilprobe 2



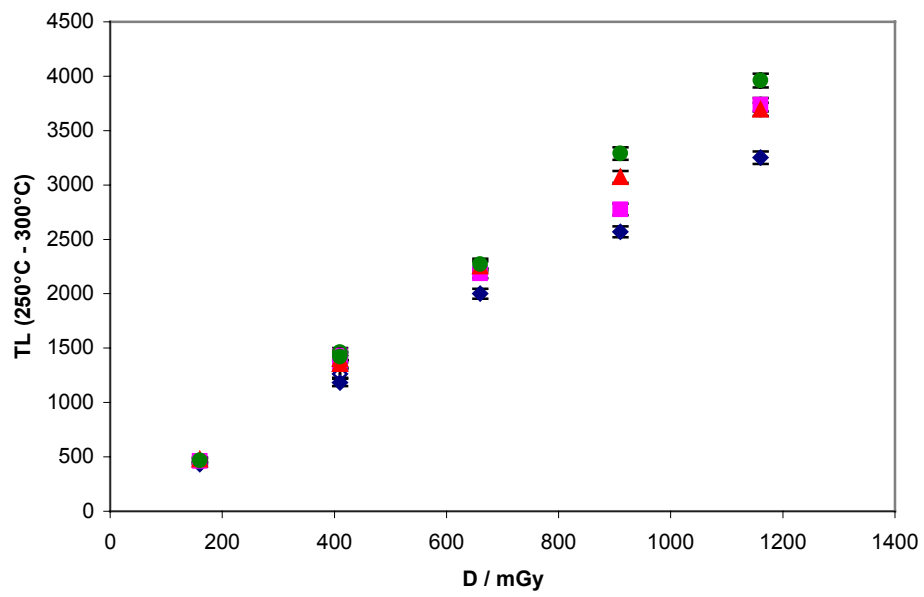
Probe Aich, 4 versch. Teilproben



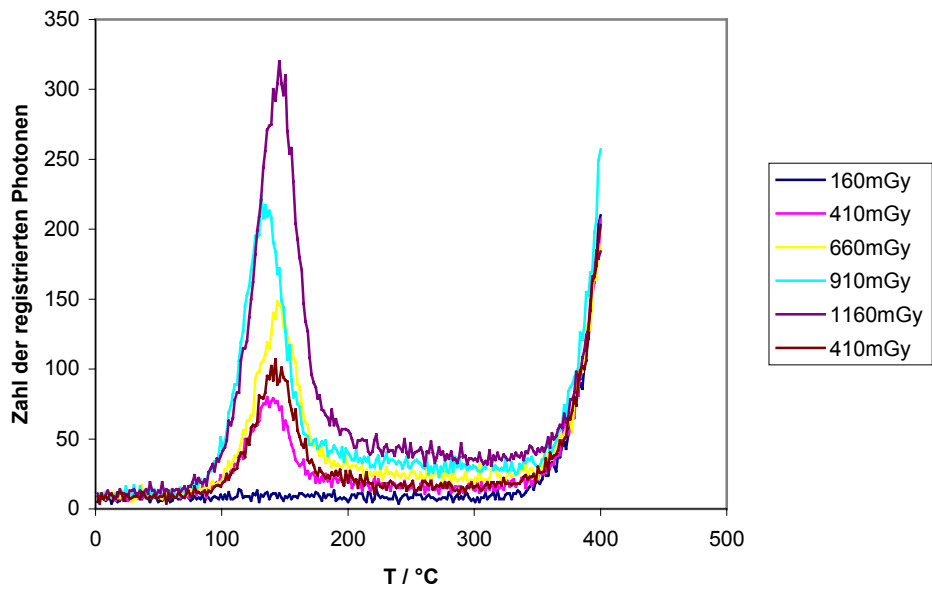
Probe ASMO, Teilprobe 4



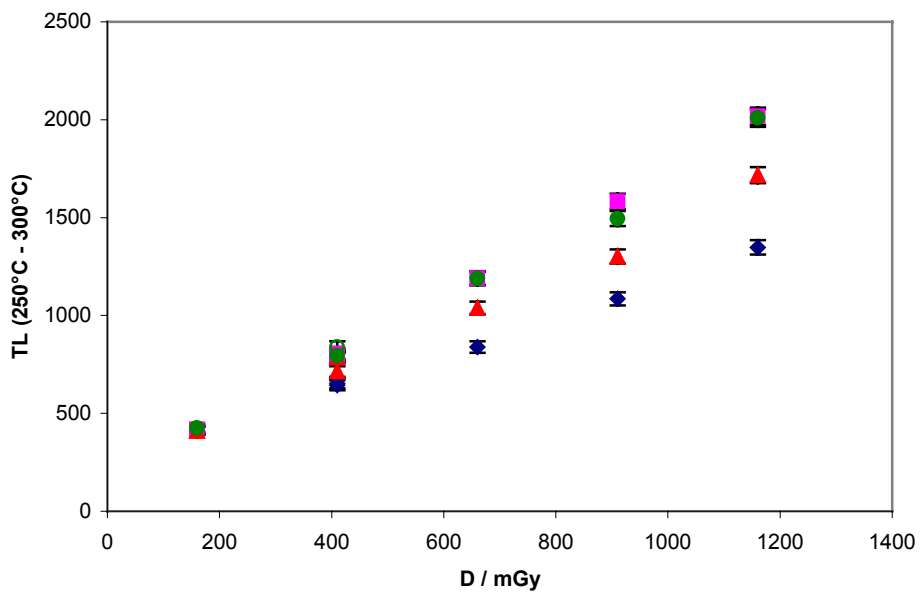
Probe ASMO, 4 versch. Teilproben



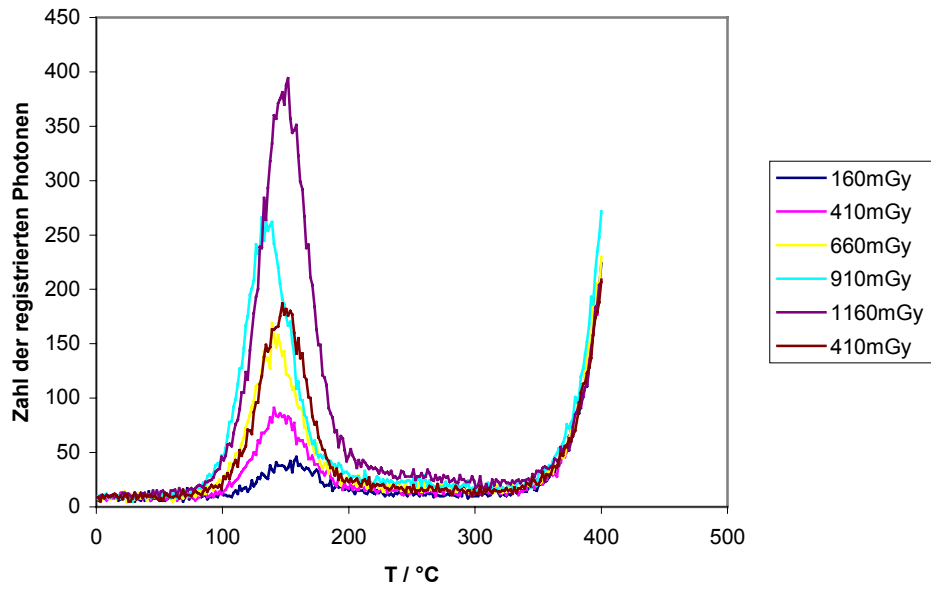
Probe KB, Teilprobe 2



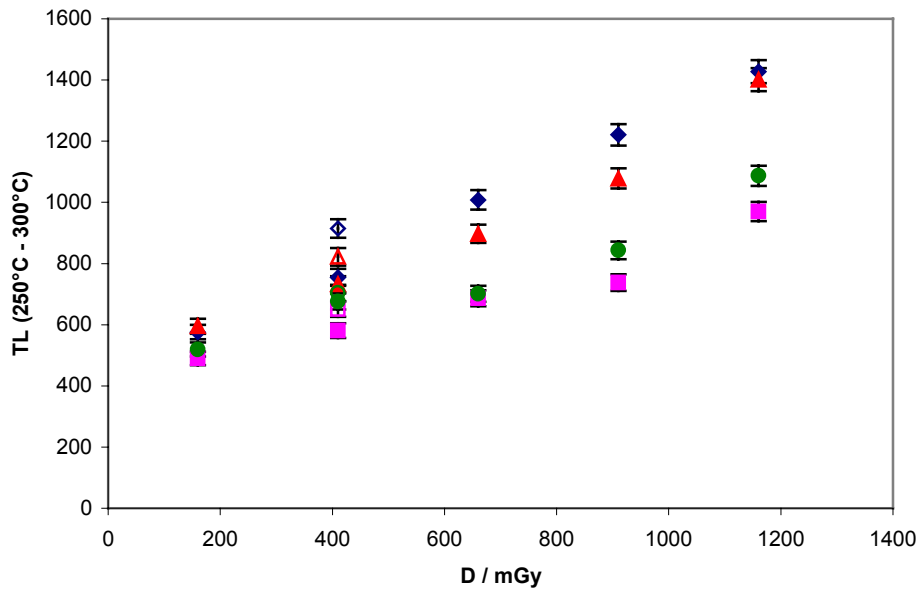
Probe KB, 4 versch. Teilproben



Probe P, Teilprobe 3

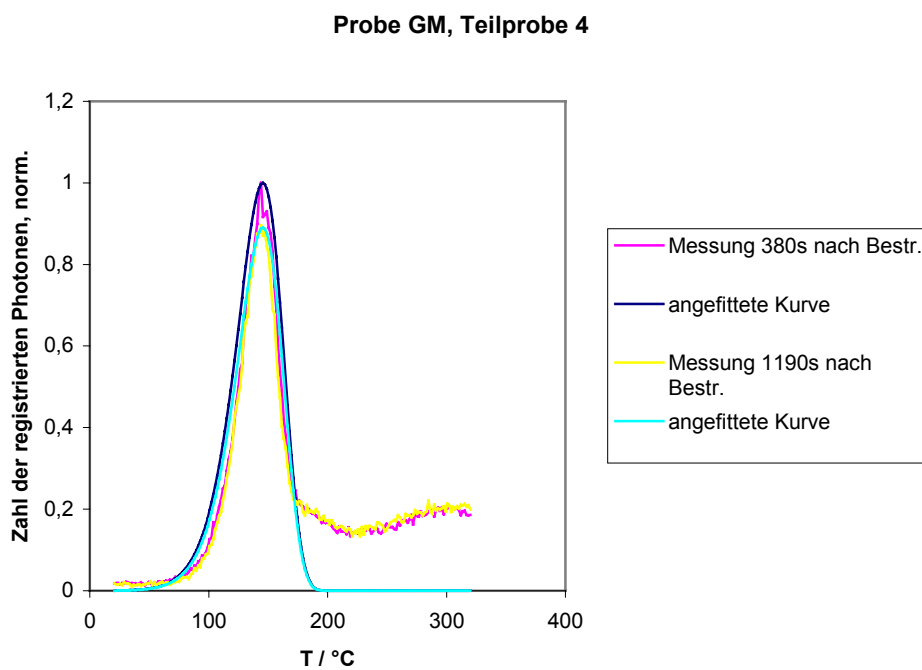


Probe P, 4 versch. Teilproben

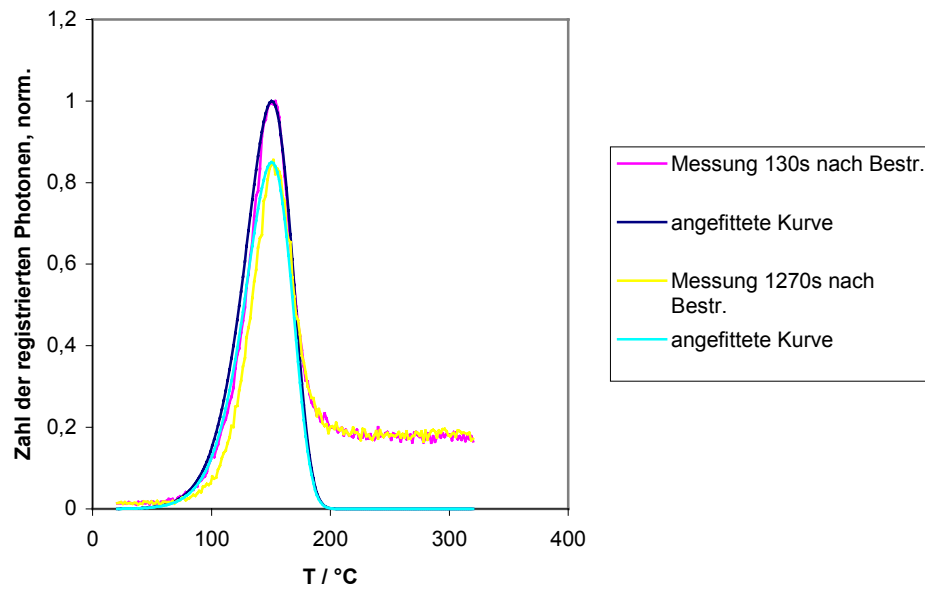


A 1.1.3 Glowkurven und deren Anpassungen sämtlicher untersuchter Proben zur Bestimmung der Lebensdauer des Signals des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus

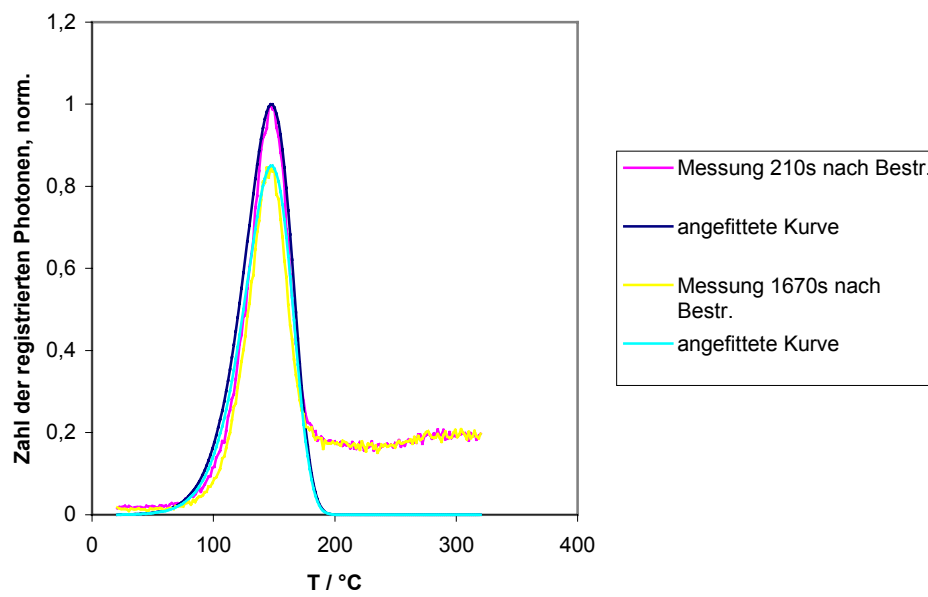
Im vorliegenden Anhang A 1.1.3 werden repräsentative Glowkurven und deren Anpassungen sämtlicher untersuchter Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) zur Bestimmung der Lebensdauer des Signals des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus dargestellt. Es handelt sich um die zur Abb. 26 korrespondierenden Darstellungen.



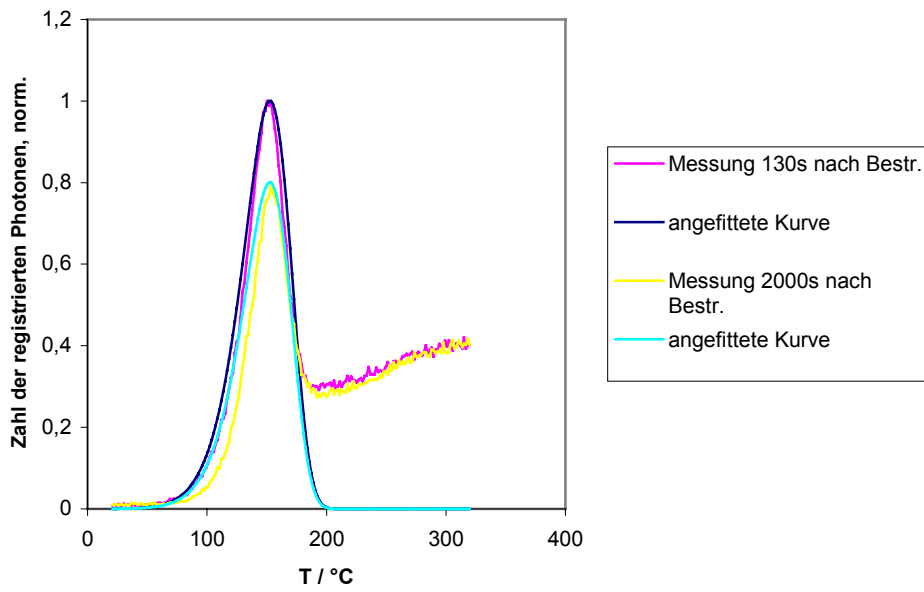
Probe HHDI, Teilprobe 1



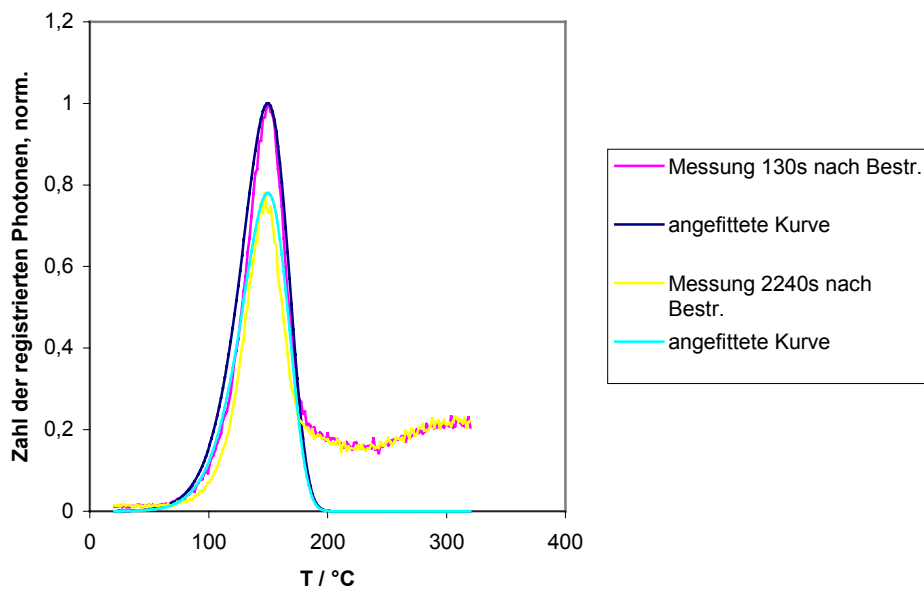
Probe AK, Teilprobe 2



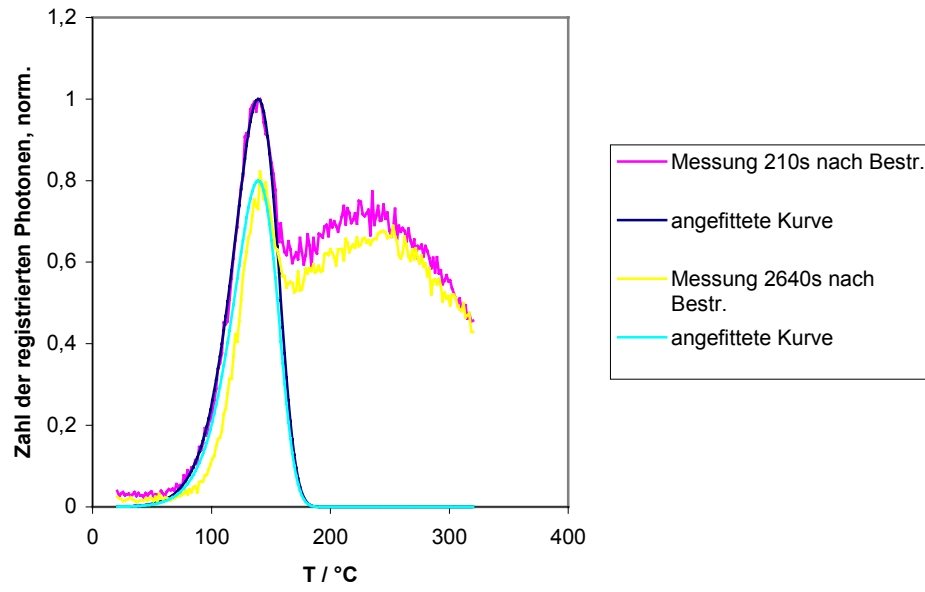
Probe LBB, Teilprobe 1



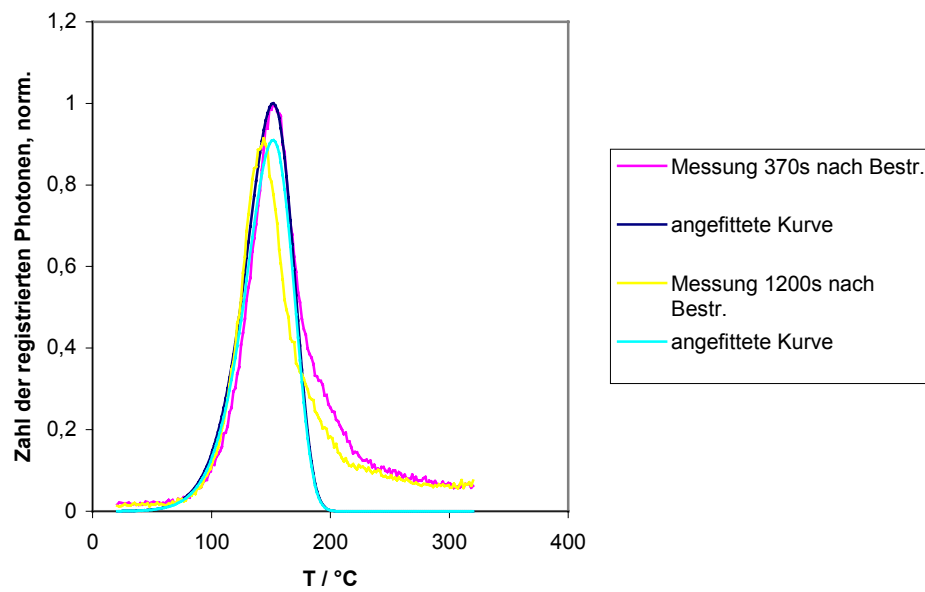
Probe Z, Teilprobe 1



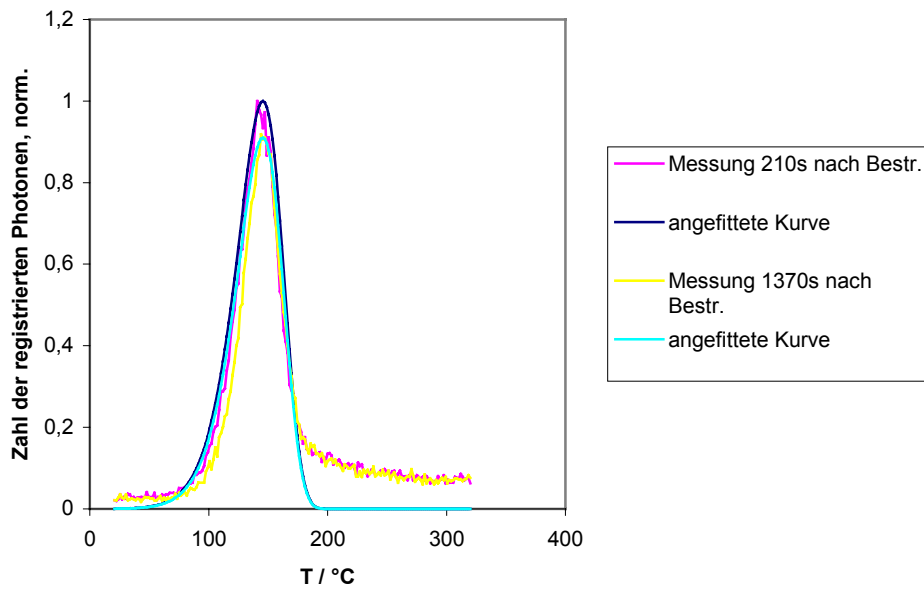
Probe Aich, Teilprobe 2



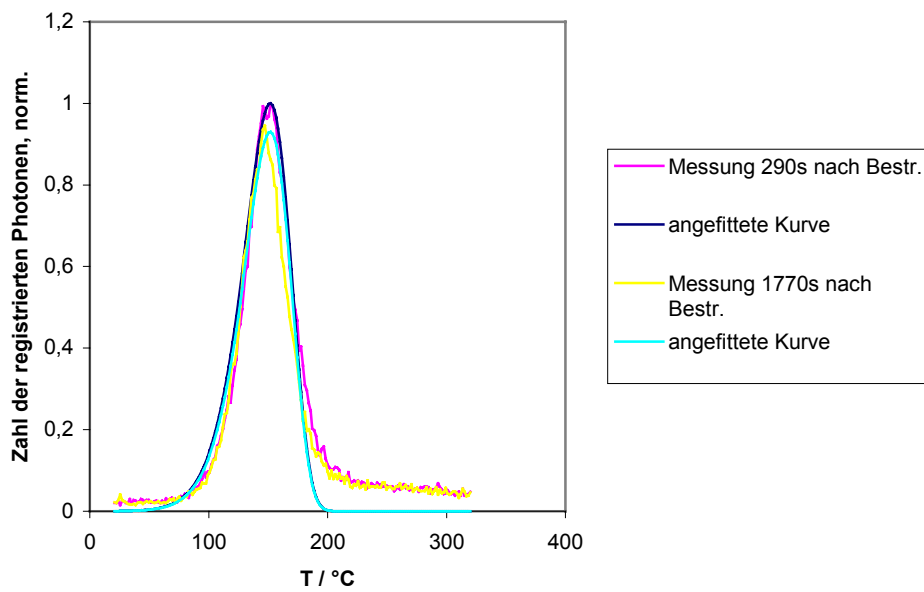
Probe ASMO, Teilprobe 4



Probe KB, Teilprobe 2



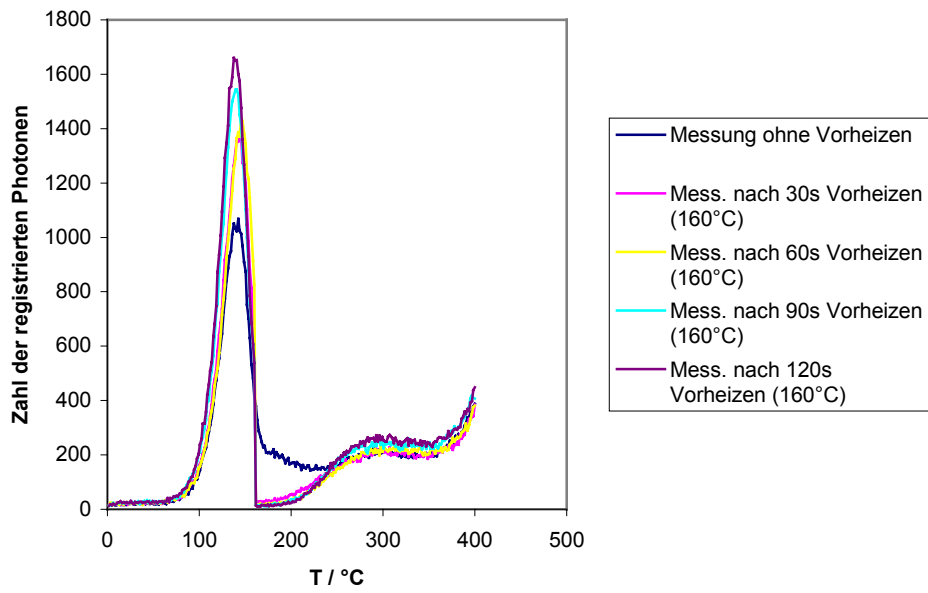
Probe P, Teilprobe 3



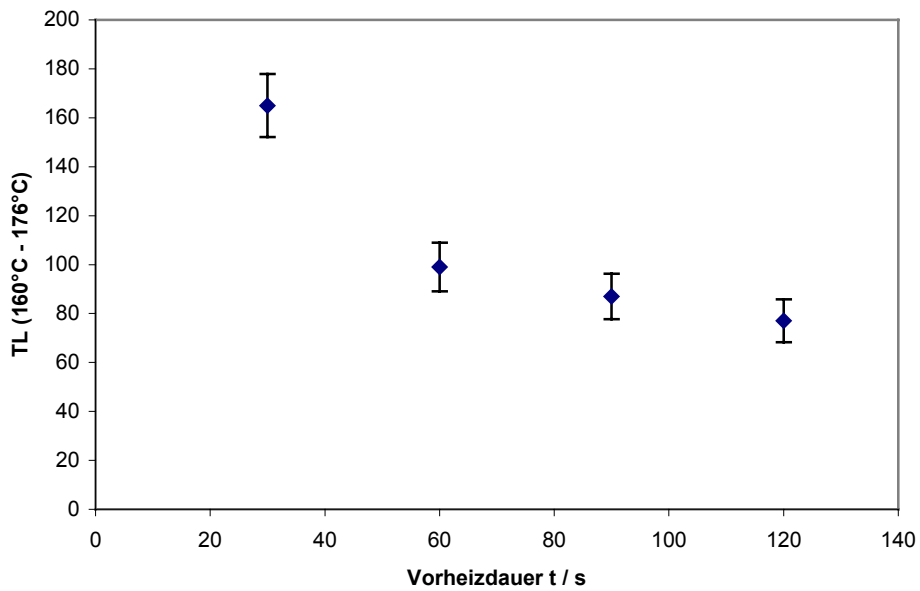
A 1.1.4 Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Bestimmung geeigneter Vorheizdauern

Im vorliegenden Anhang A 1.1.4 werden repräsentative Glowkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) zur Bestimmung geeigneter Vorheizdauern dargestellt. Es handelt sich um die zur Abb. 27 korrespondierenden Darstellungen.

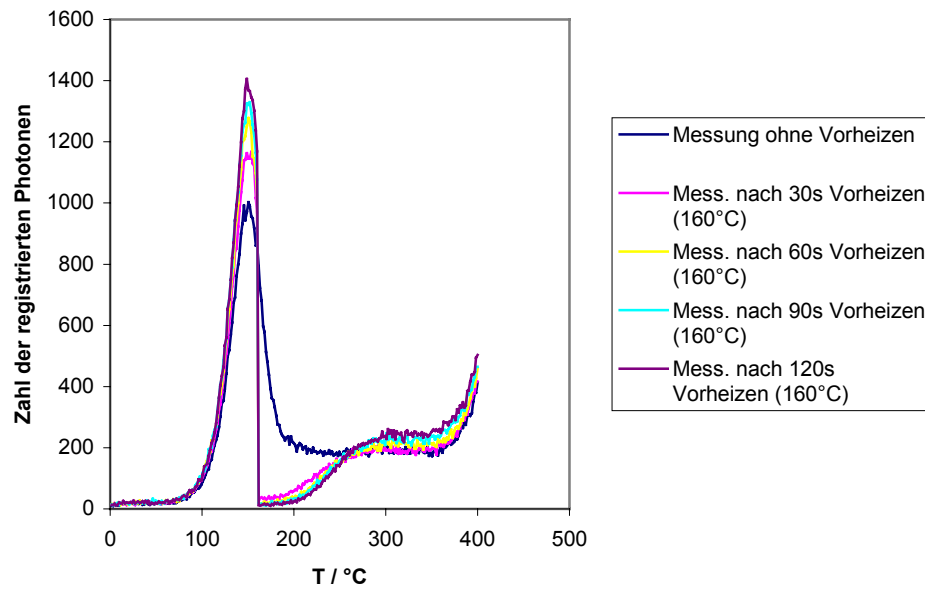
Probe GM, Teilprobe 4



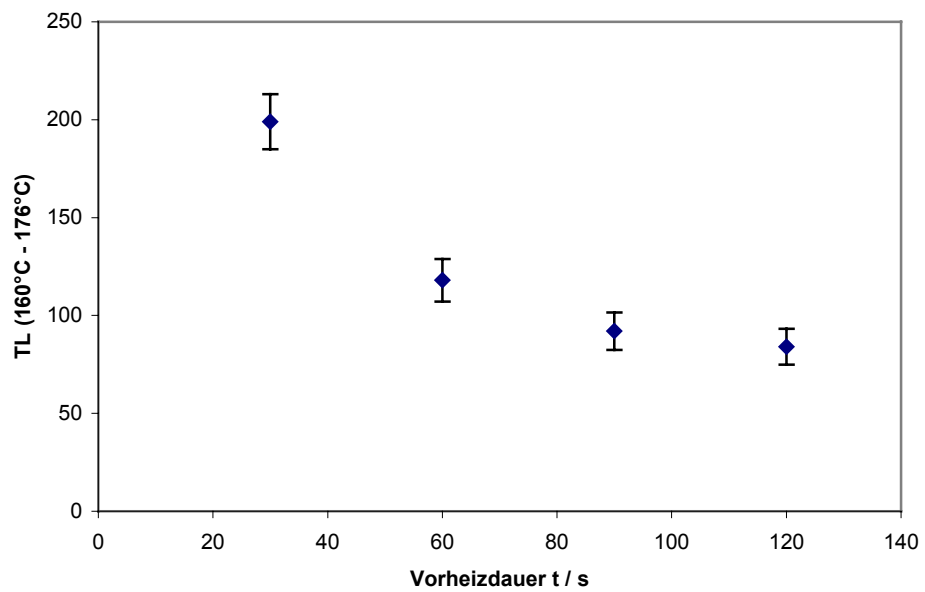
Probe GM, Teilprobe 4



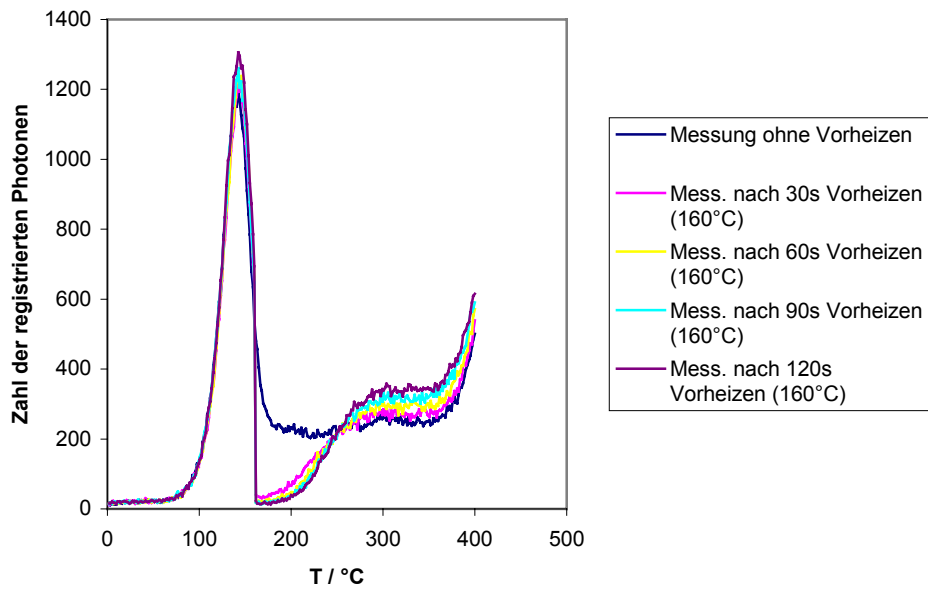
Probe HHDI, Teilprobe 1



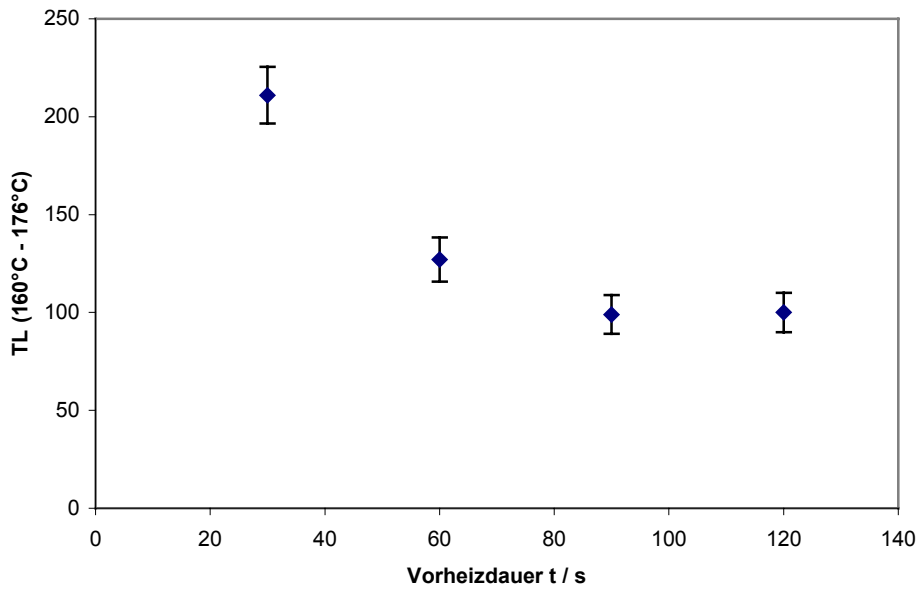
Probe HHDI, Teilprobe 1



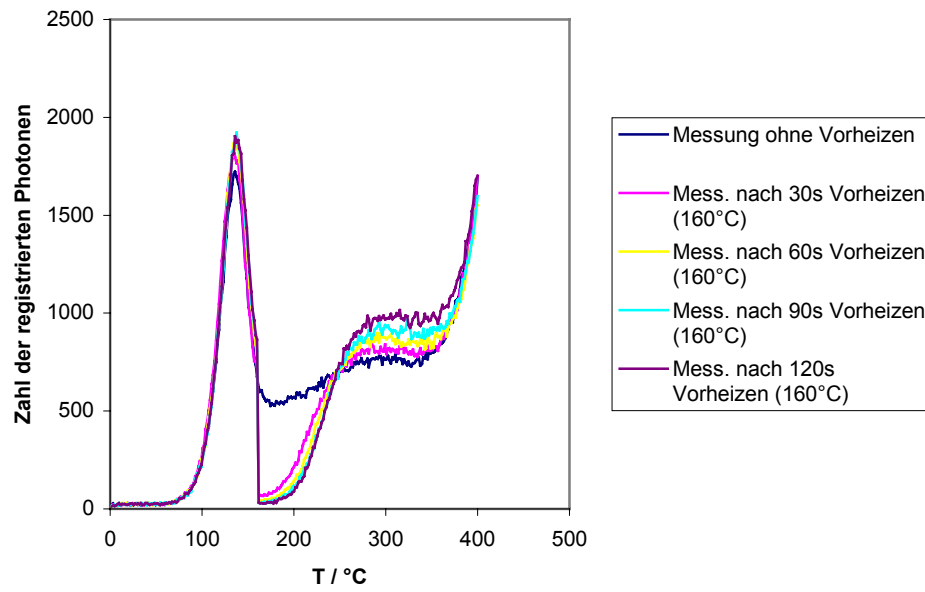
Probe AK, Teilprobe 2



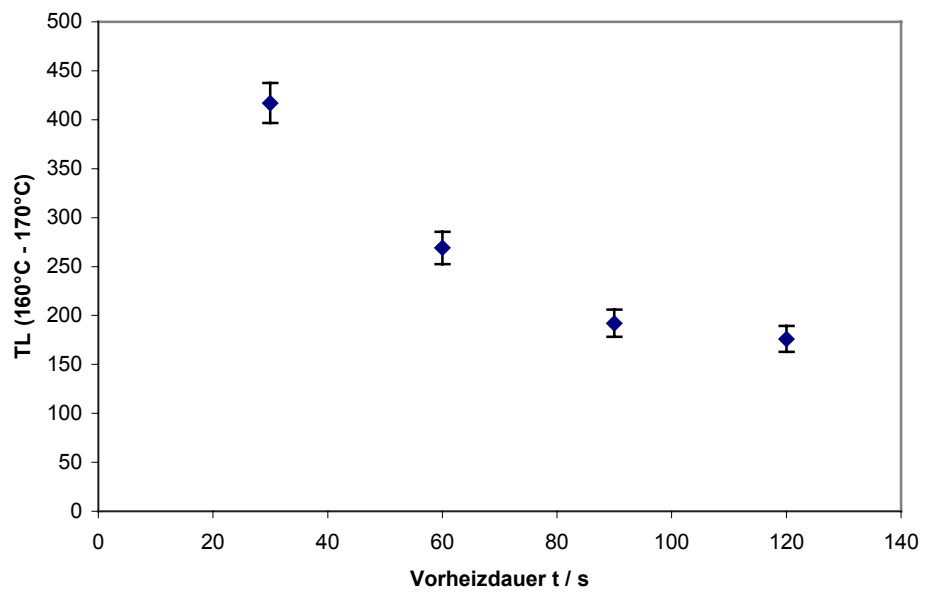
Probe AK, Teilprobe 2



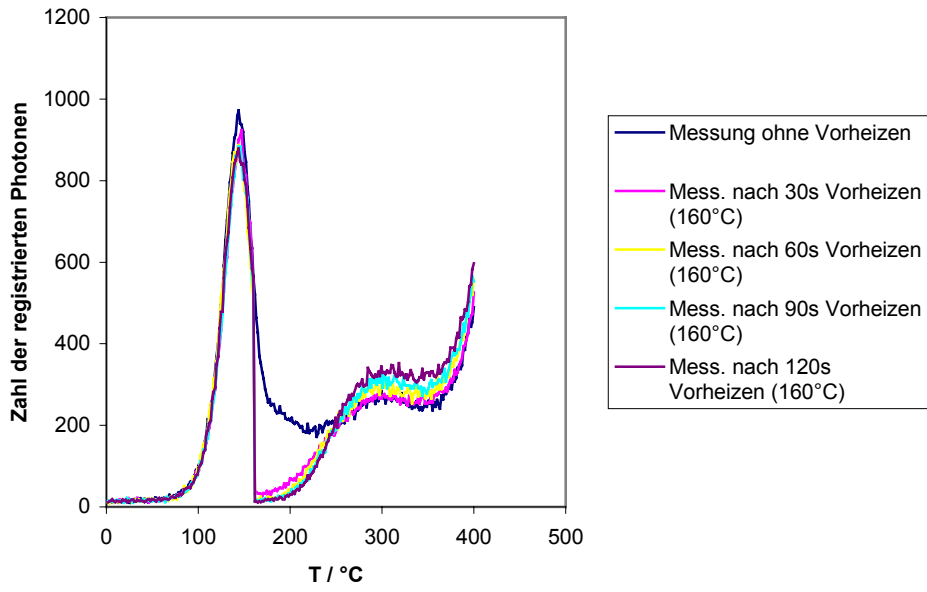
Probe LBB, Teilprobe 1



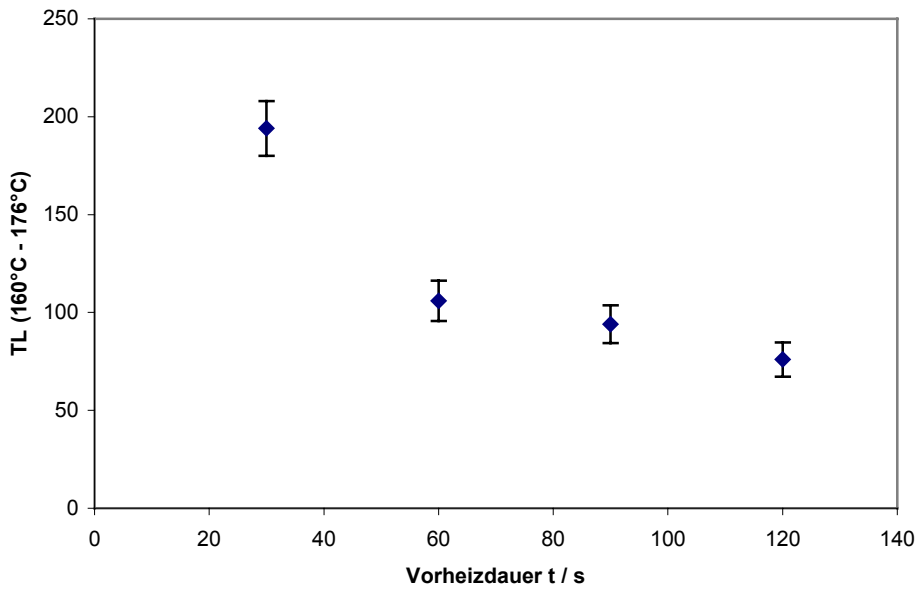
Probe LBB, Teilprobe 1



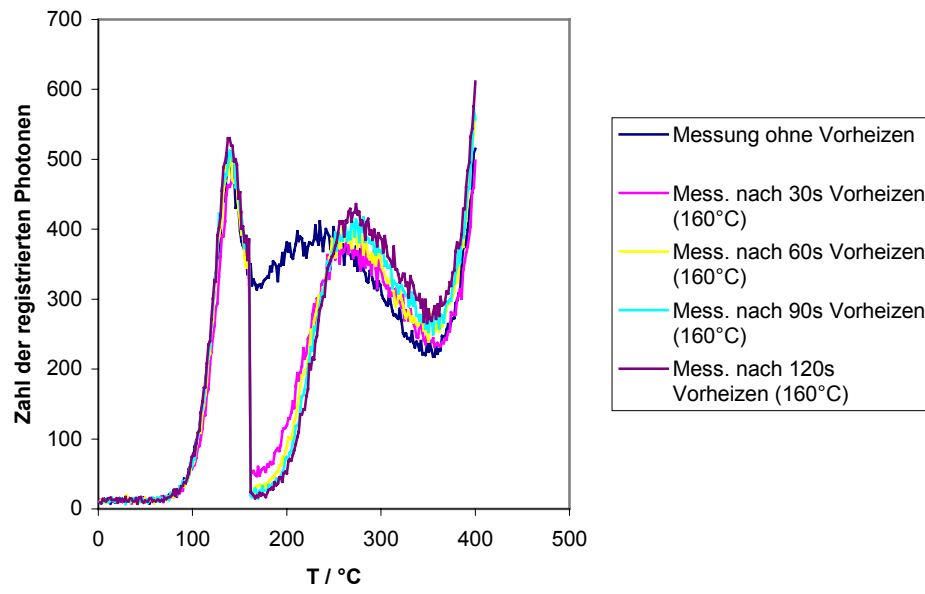
Probe Z, Teilprobe 1



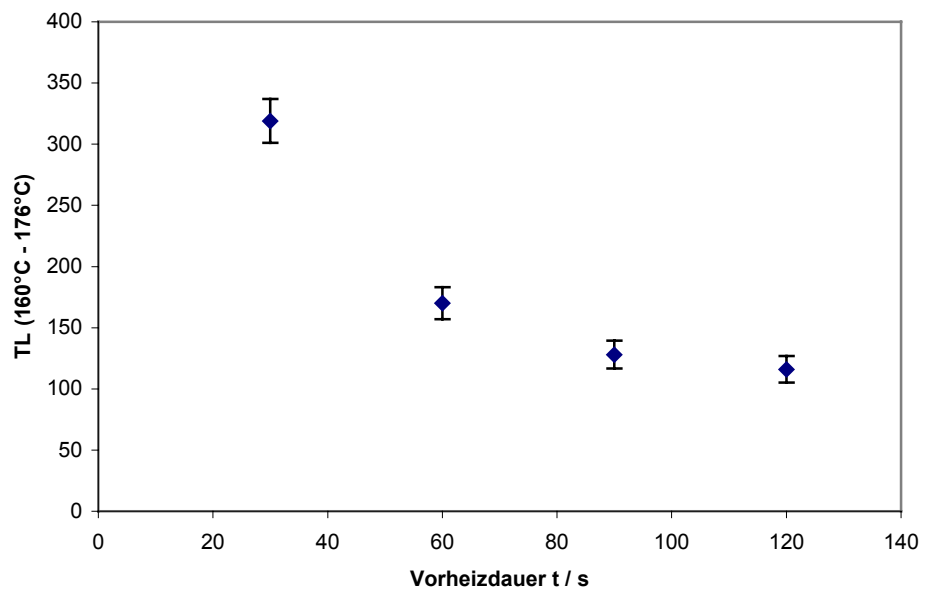
Probe Z, Teilprobe 1



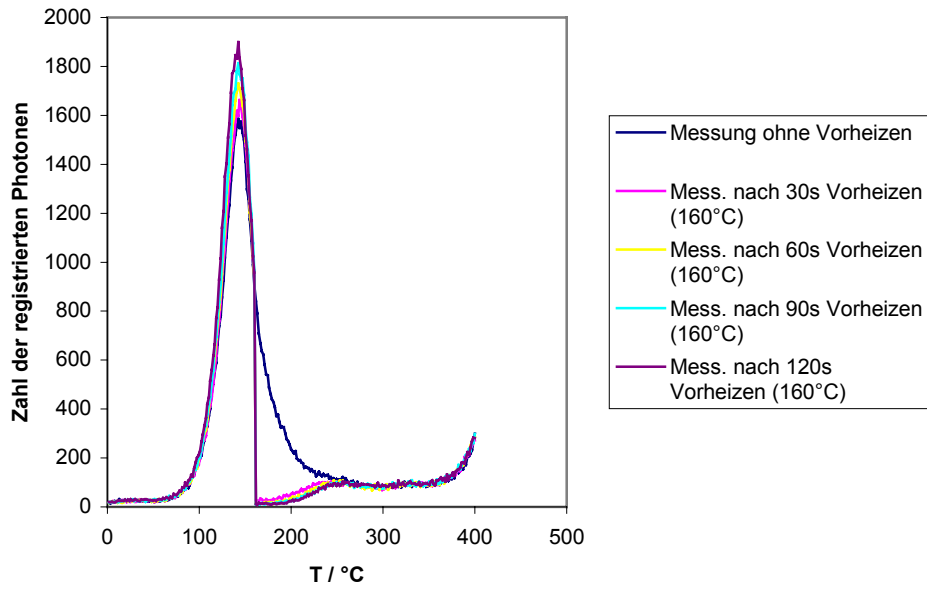
Probe Aich, Teilprobe 2



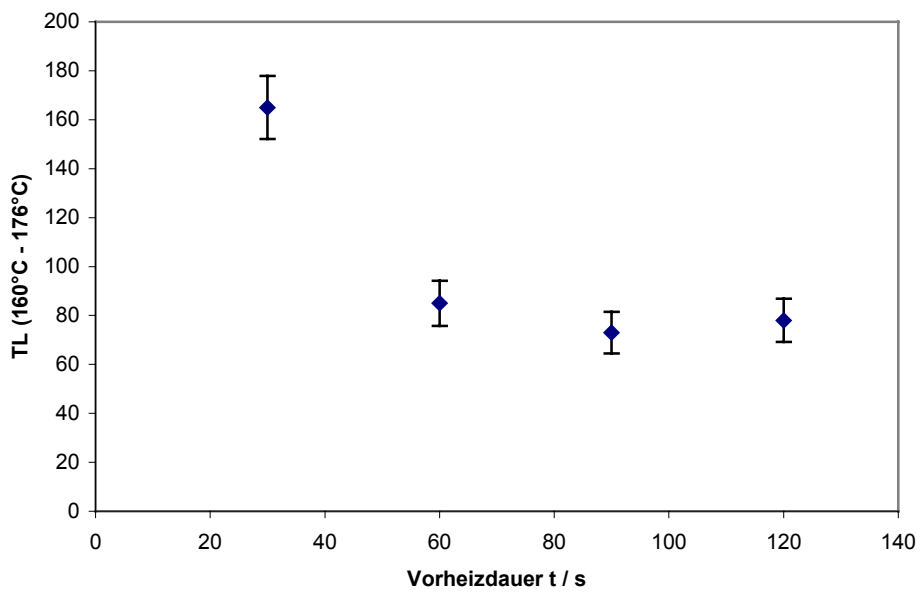
Probe Aich, Teilprobe 2



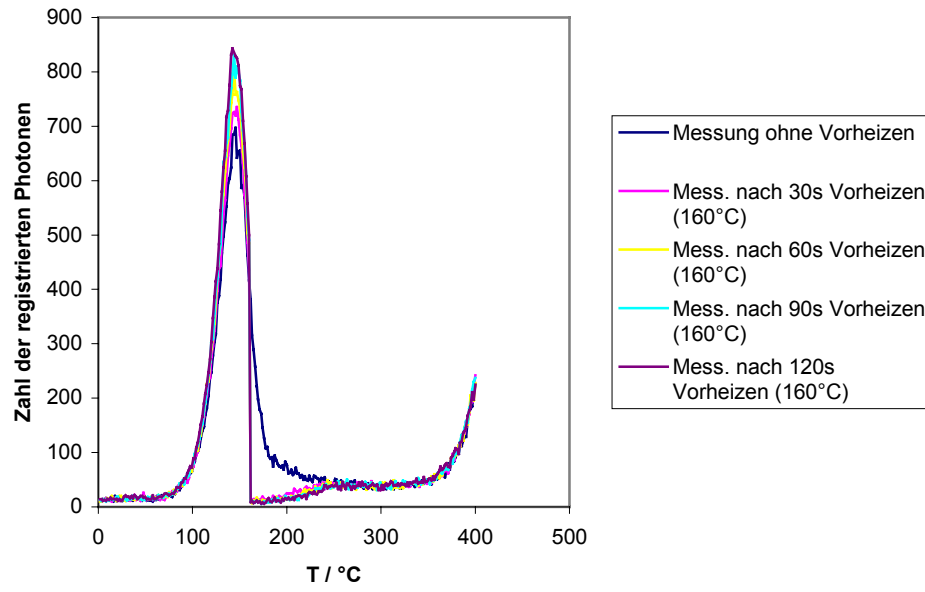
Probe ASMO, Teilprobe 4



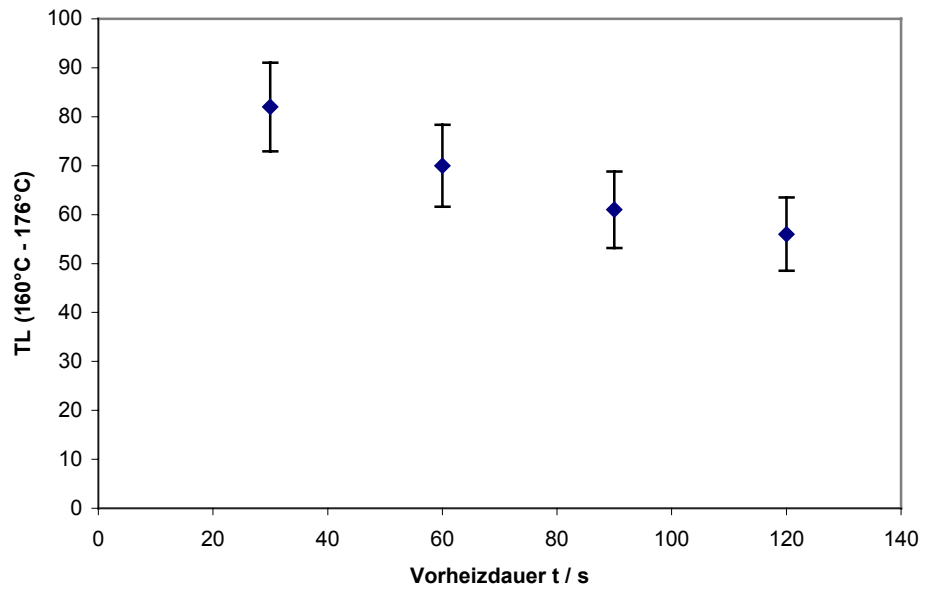
Probe ASMO, Teilprobe 4



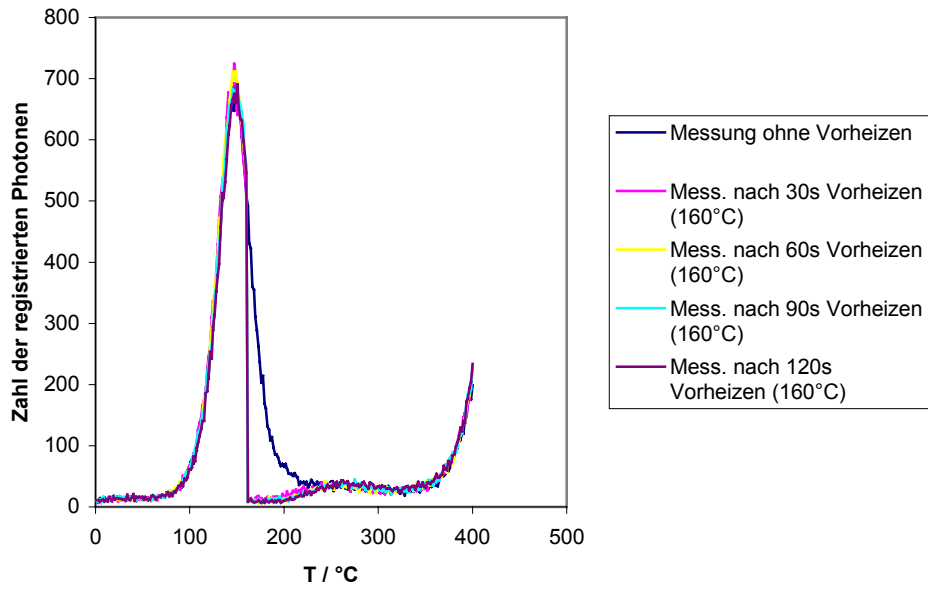
Probe KB, Teilprobe 2



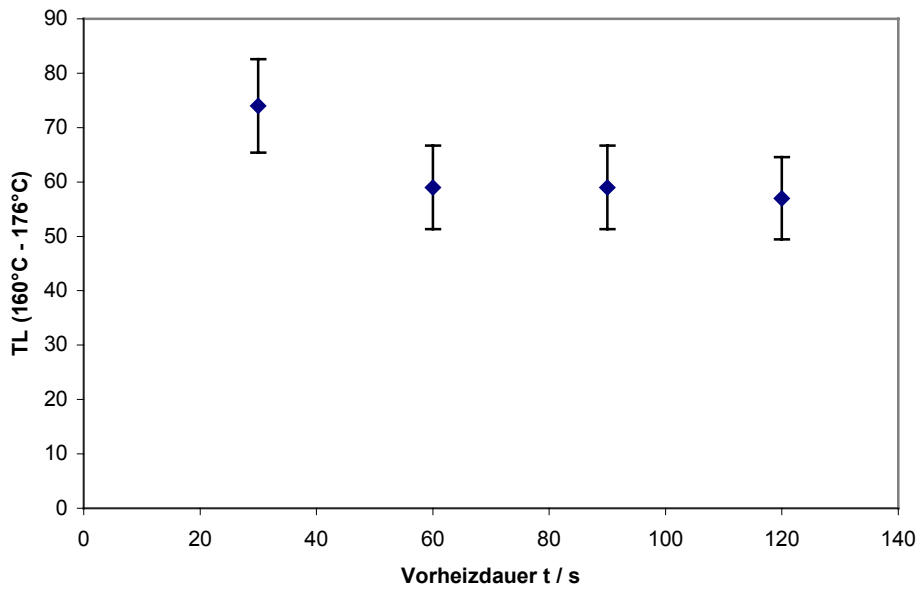
Probe KB, Teilprobe 2



Probe P, Teilprobe 3



Probe P, Teilprobe 3

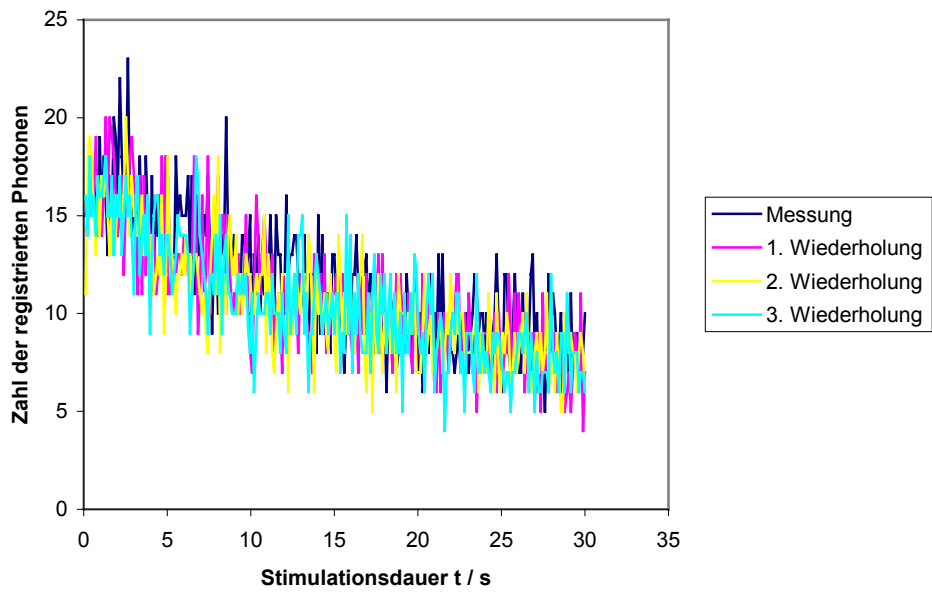


A 1.2. Zum Kap. 5.2: Probeneigenschaften gegenüber Photonen- stimulierter Lumineszenz

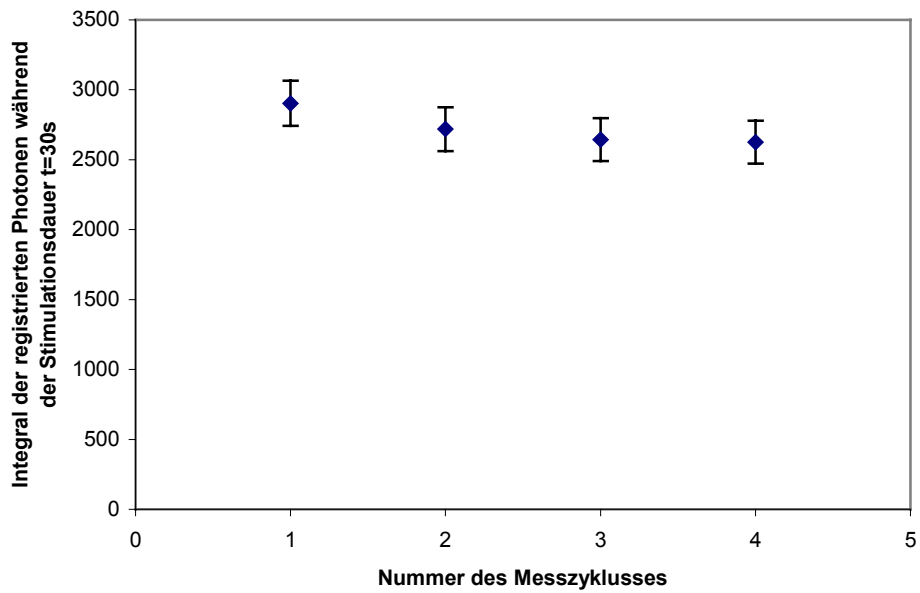
A 1.2.1 Repräsentative Ausleuchtkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben zur Untersuchung der Änderung der Probenemp- findlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und PSL-Messung

Im vorliegenden Anhang A 1.2.1 werden repräsentative Ausleuchtkurven und deren Auswertungen sämtlicher untersuchter Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) zur Überprüfung der Änderung der Probenempfindlichkeit bei wiederholter Bestrahlung und PSL-Messung dargestellt. Es handelt sich um die zur Abb. 29 korrespondierenden Darstellungen.

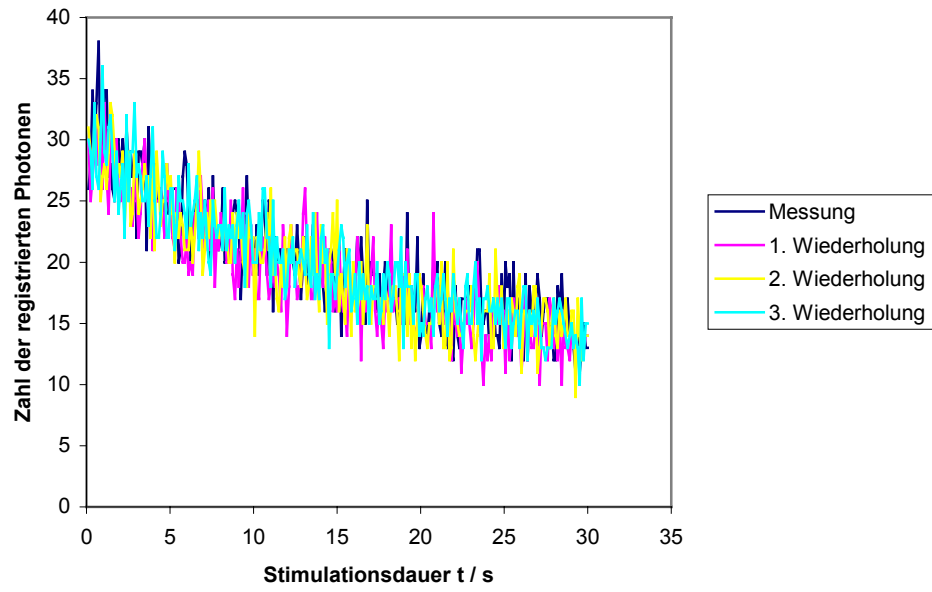
Probe GM, Teilprobe 4



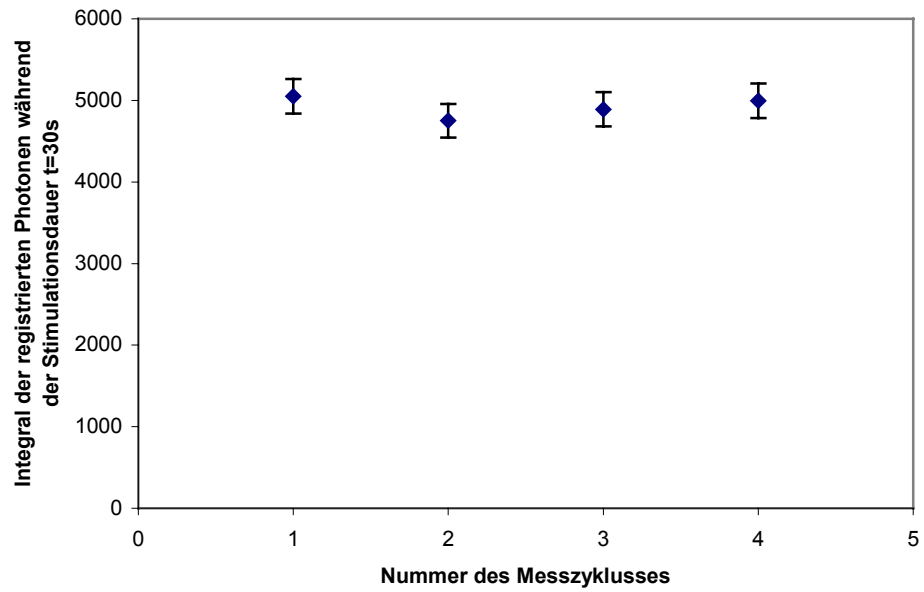
Probe GM, Teilprobe 4



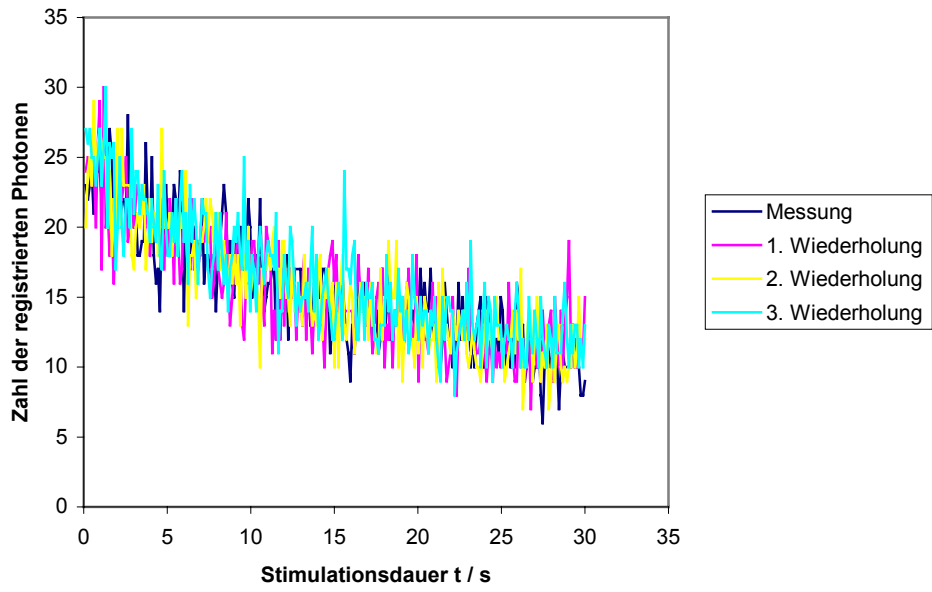
Probe HHDI, Teilprobe 1



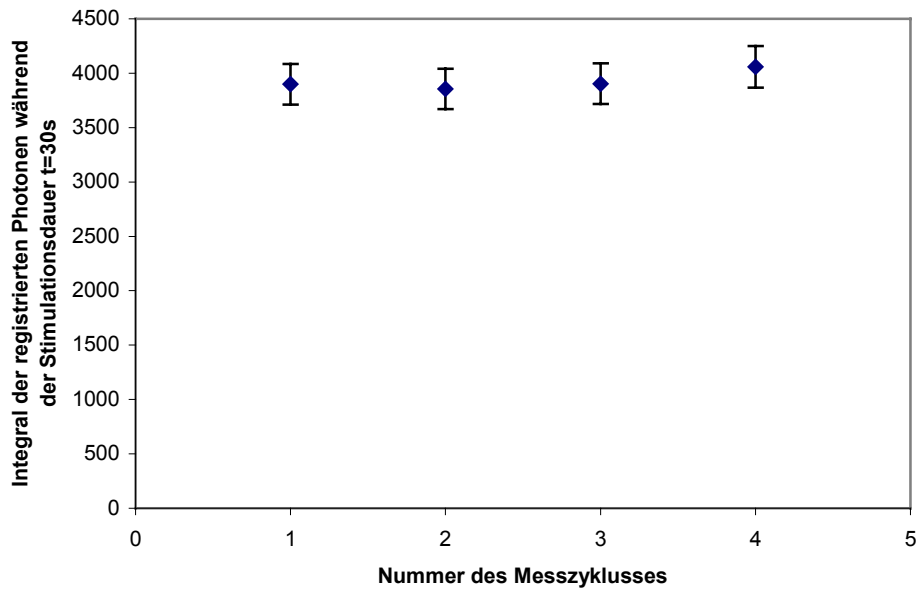
Probe HHDI, Teilprobe 1



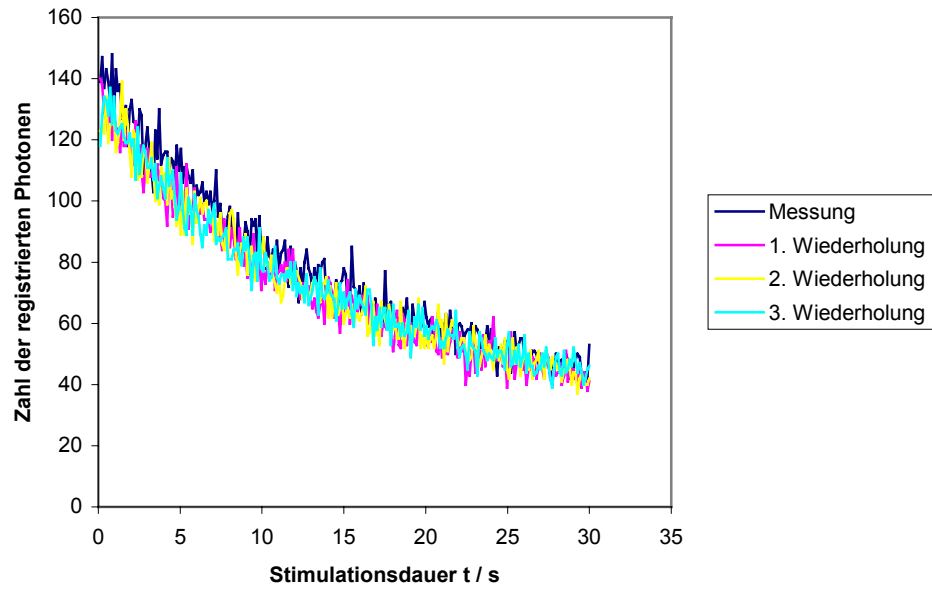
Probe AK, Teilprobe 2



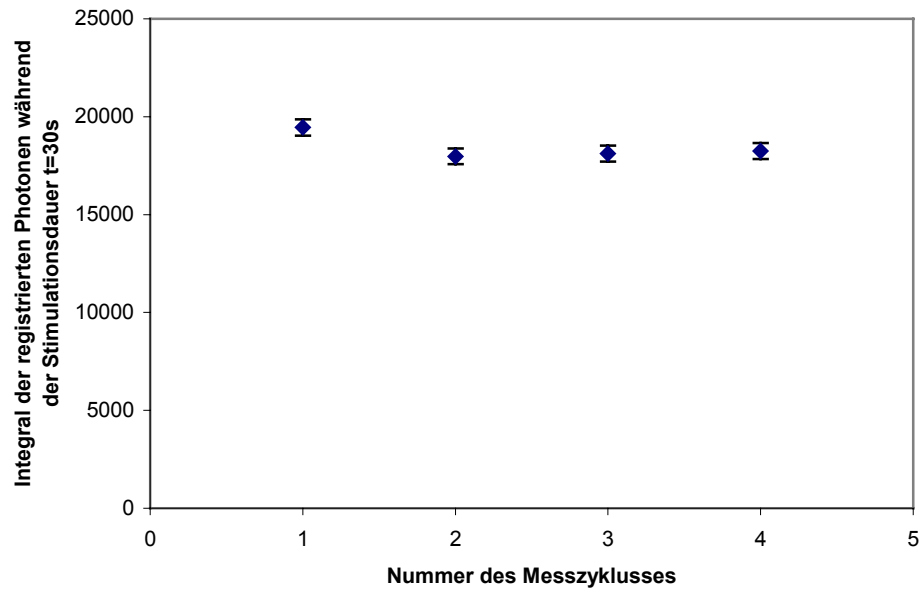
Probe AK, Teilprobe 2



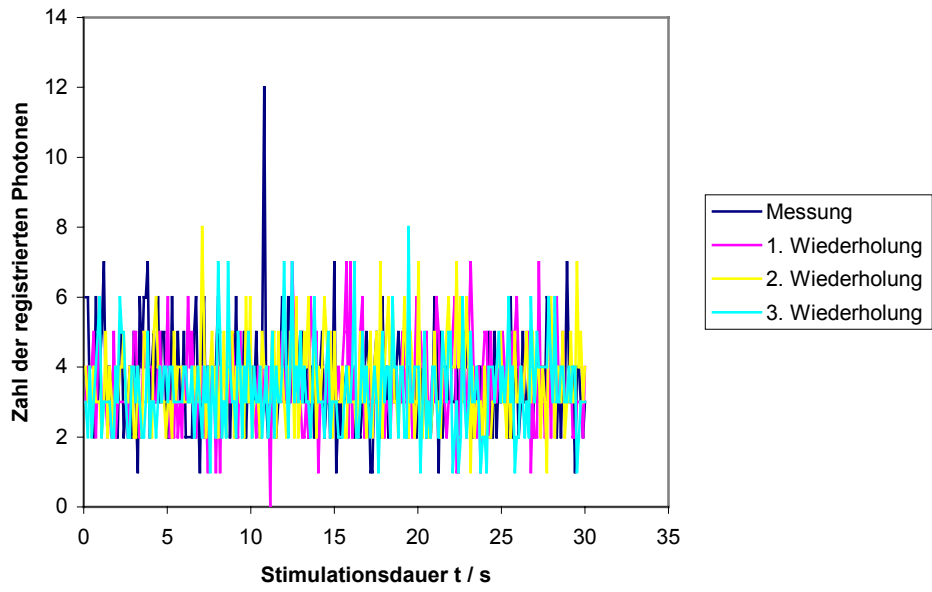
Probe LBB, Teilprobe 1



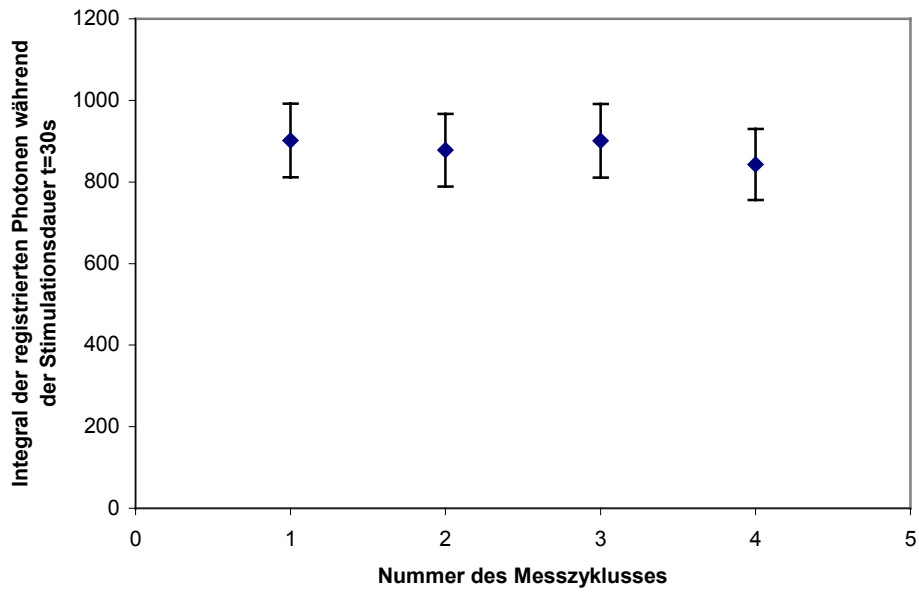
Probe LBB, Teilprobe 1



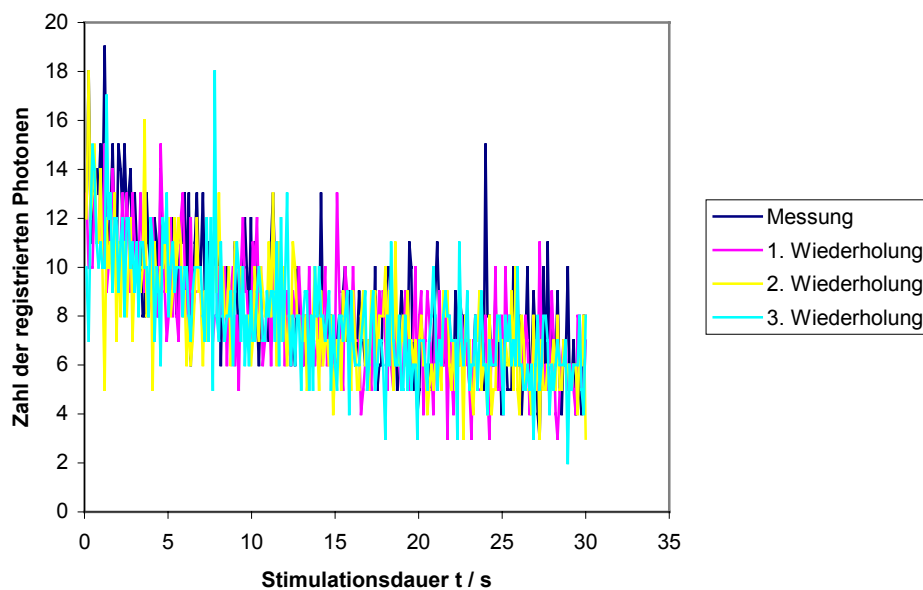
Probe Z, Teilprobe 1



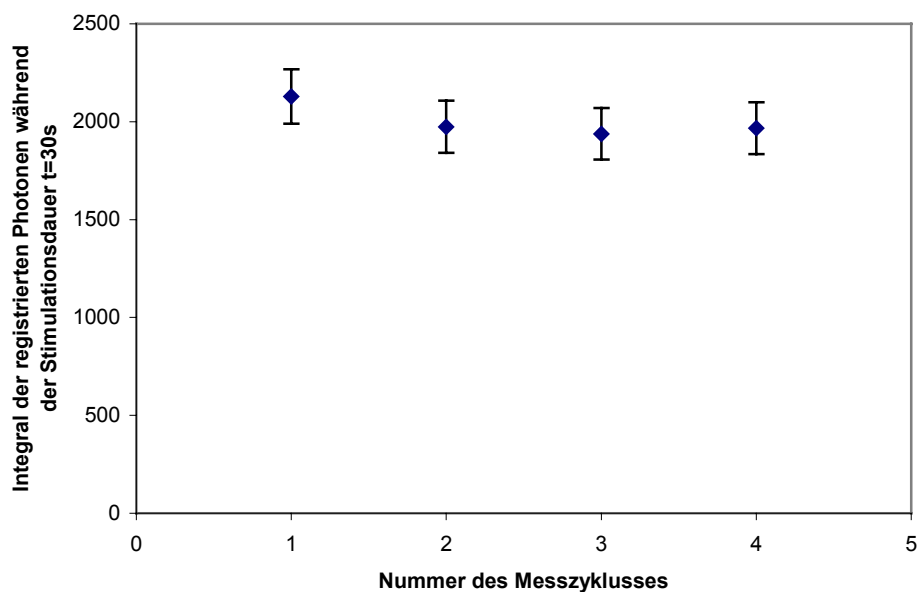
Probe Z, Teilprobe 1



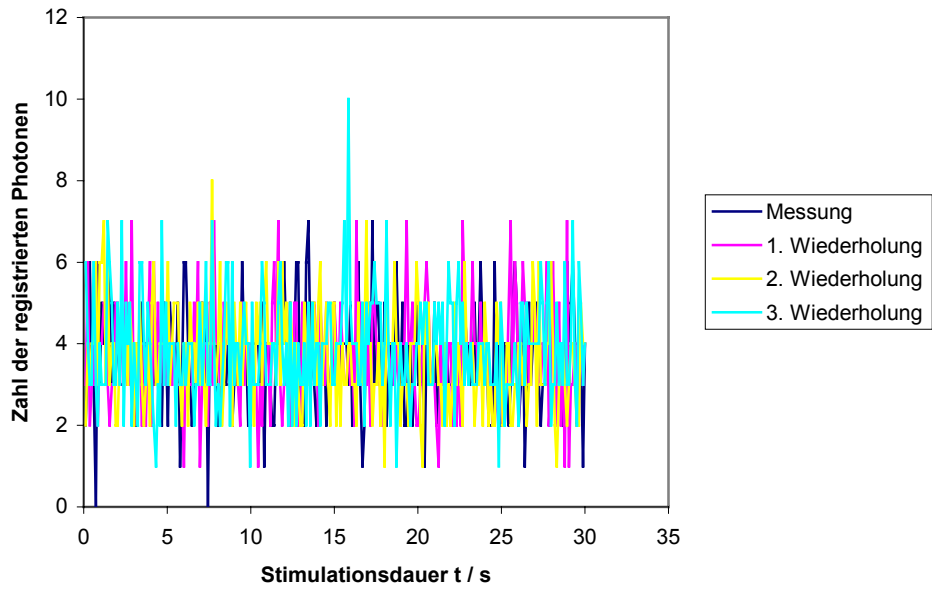
Probe Aich, Teilprobe 2



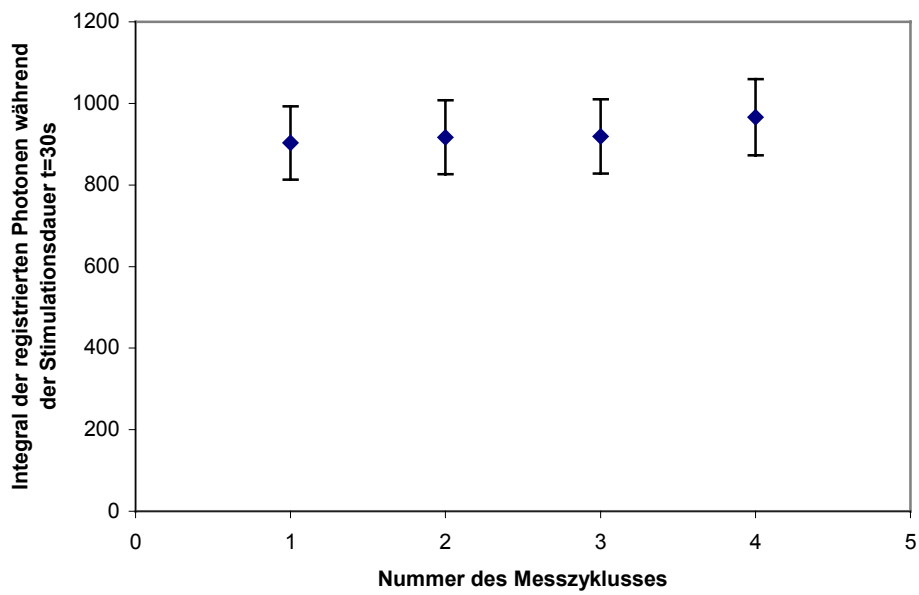
Probe Aich, Teilprobe 2



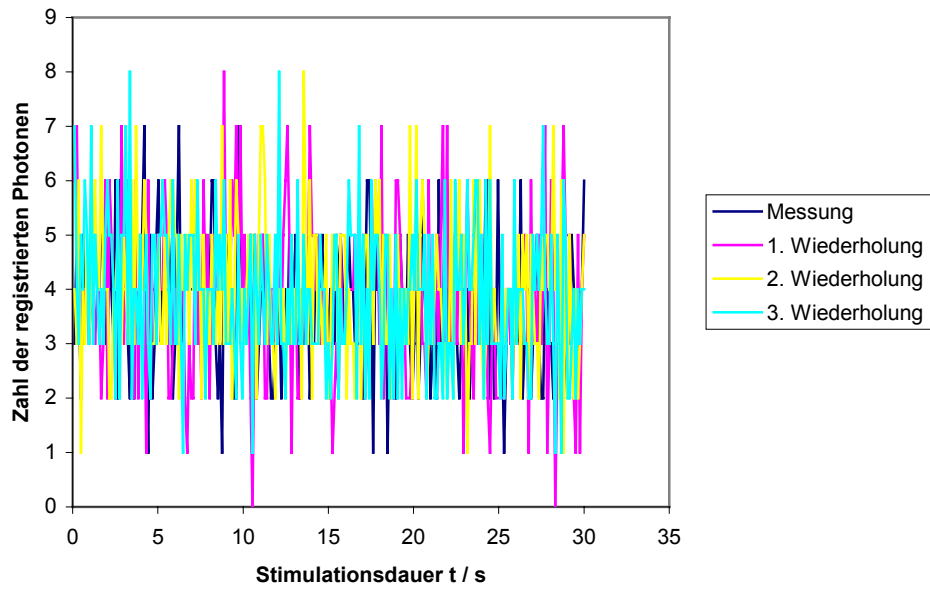
Probe ASMO, Teilprobe 4



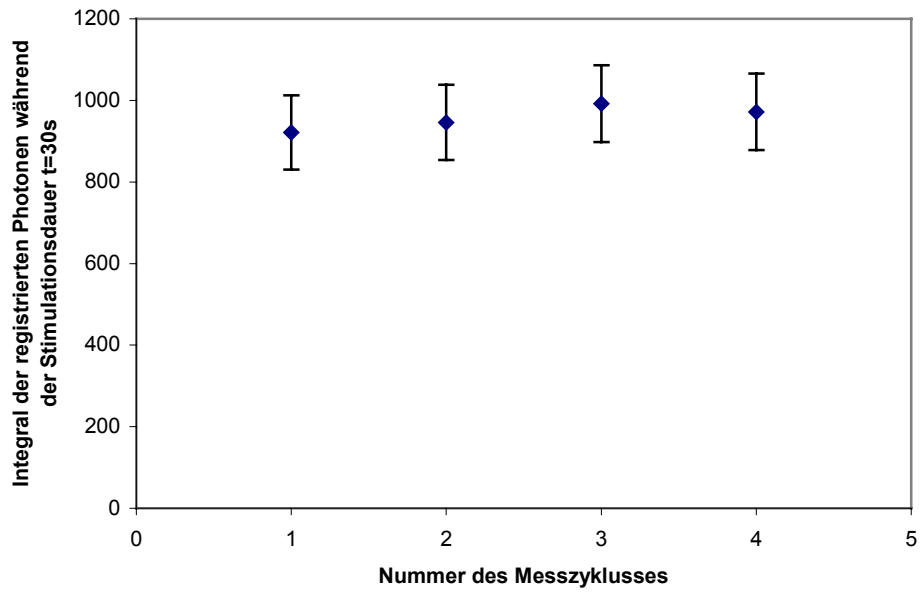
Probe ASMO, Teilprobe 4



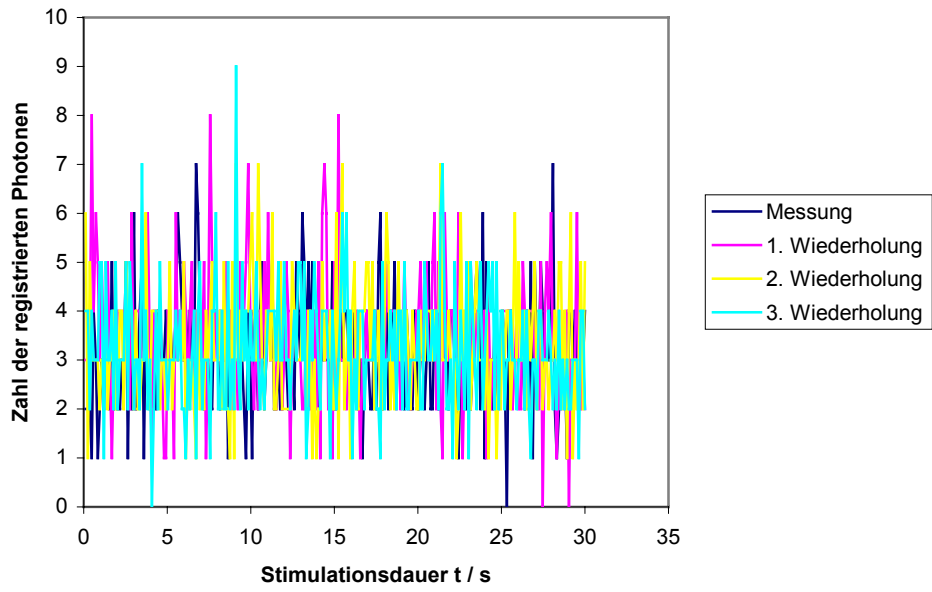
Probe KB, Teilprobe 2



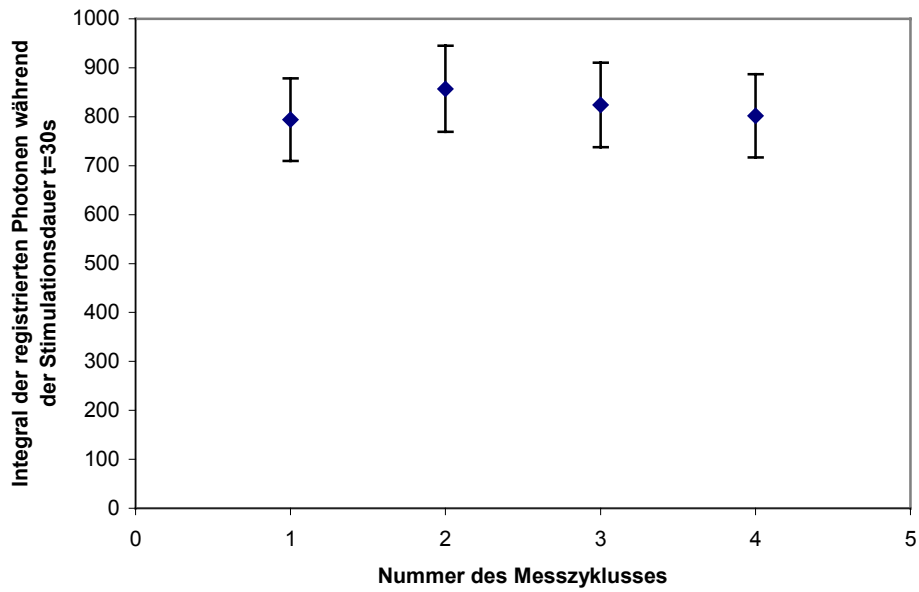
Probe KB, Teilprobe 2



Probe P, Teilprobe 3



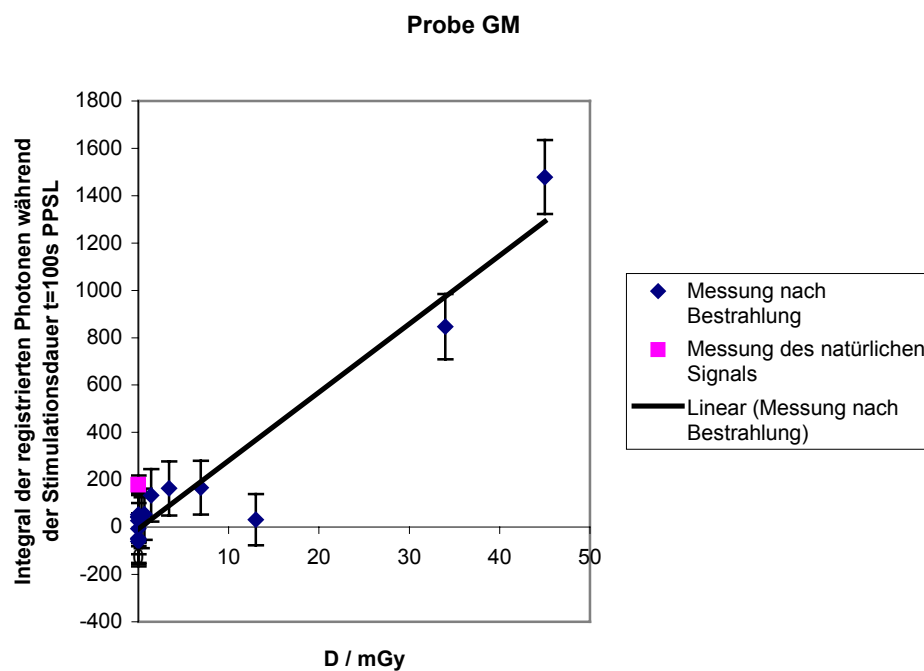
Probe P, Teilprobe 3



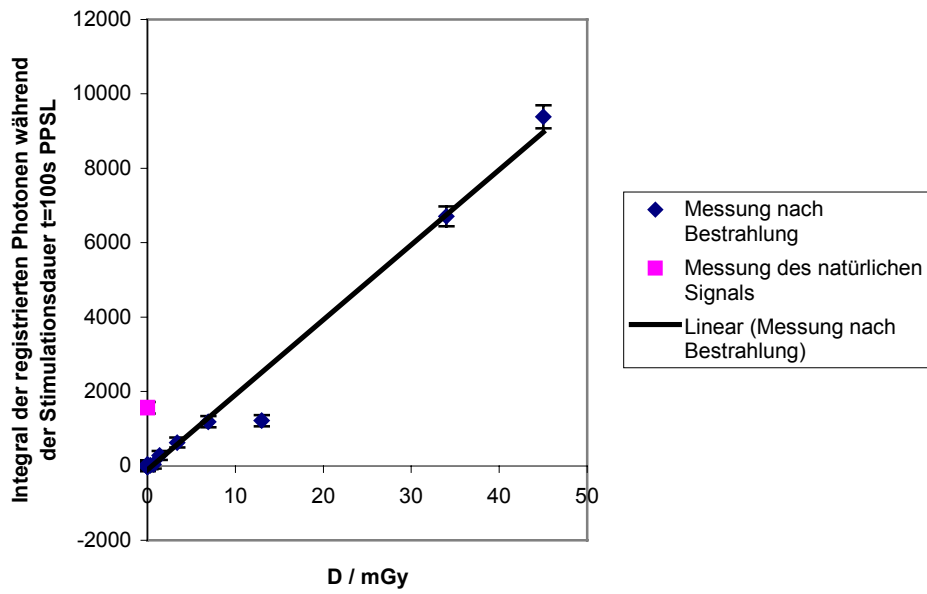
A 1.3. Zum Kap. 5.3: Bestimmung der Nachweisgrenze der Messmethode unter Verwendung der gepulsten Photonen-stimulierten Lumineszenz

A 1.3.1 Dosis-Wirkungs-Beziehung für sämtliche untersuchte Proben unter Verwendung von PPSL

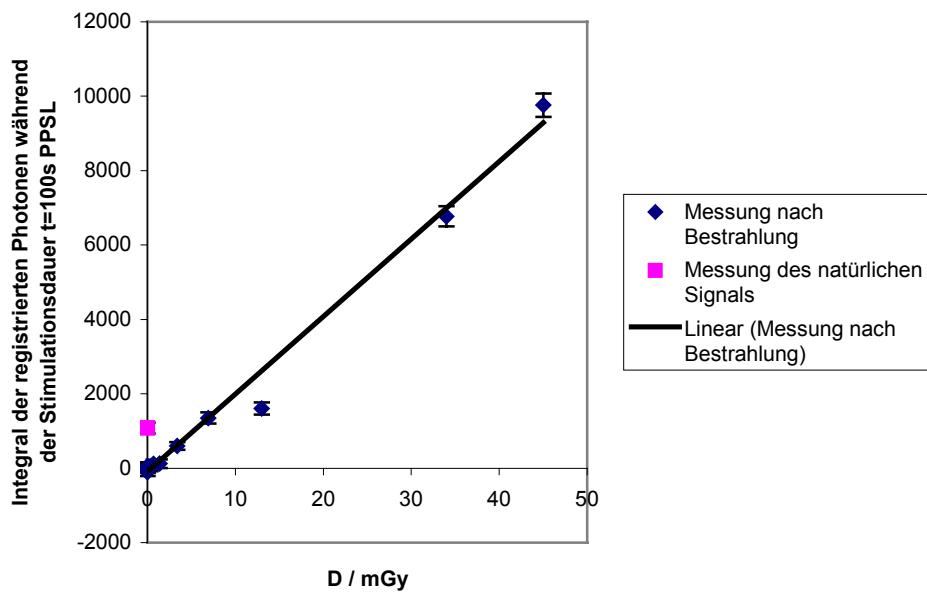
Im vorliegenden Anhang A 1.3.1 wird die Dosis-Wirkungs-Beziehung für sämtliche untersuchte Proben (detaillierte Auflistung: Tab. 1, S. 65) unter Verwendung von PPSL dargestellt. Es handelt sich um die zur Abb. 30 korrespondierenden Darstellungen.



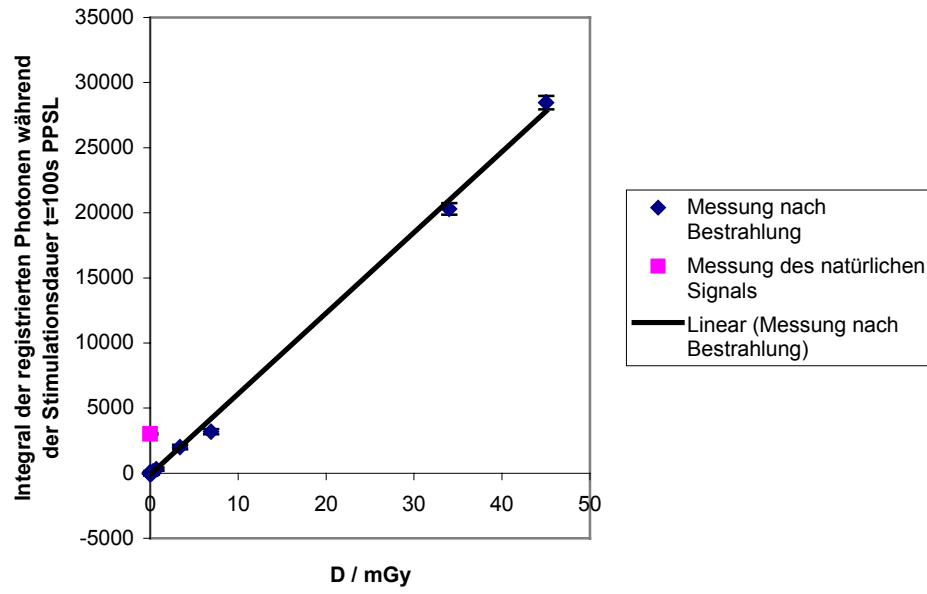
Probe HHDI



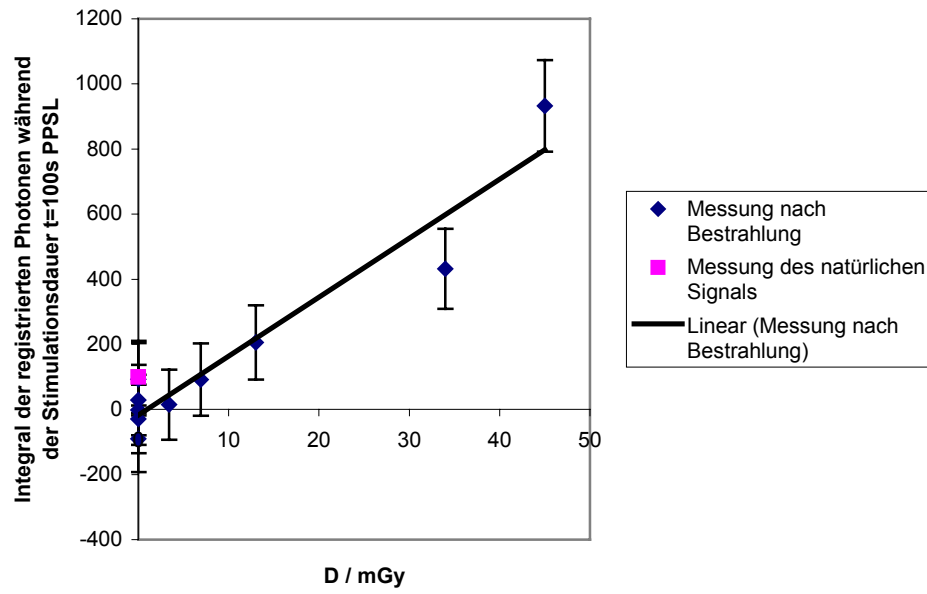
Probe AK



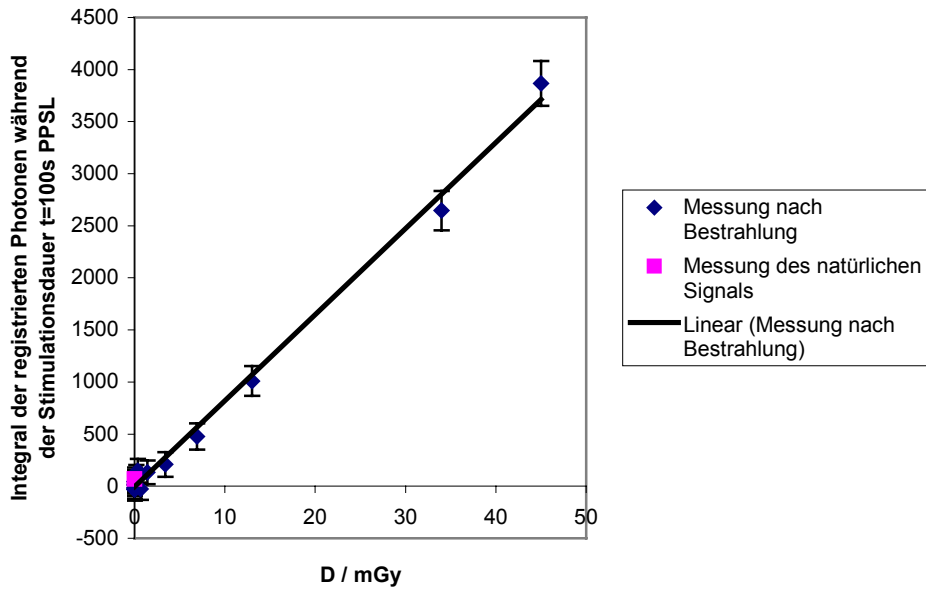
Probe LBB



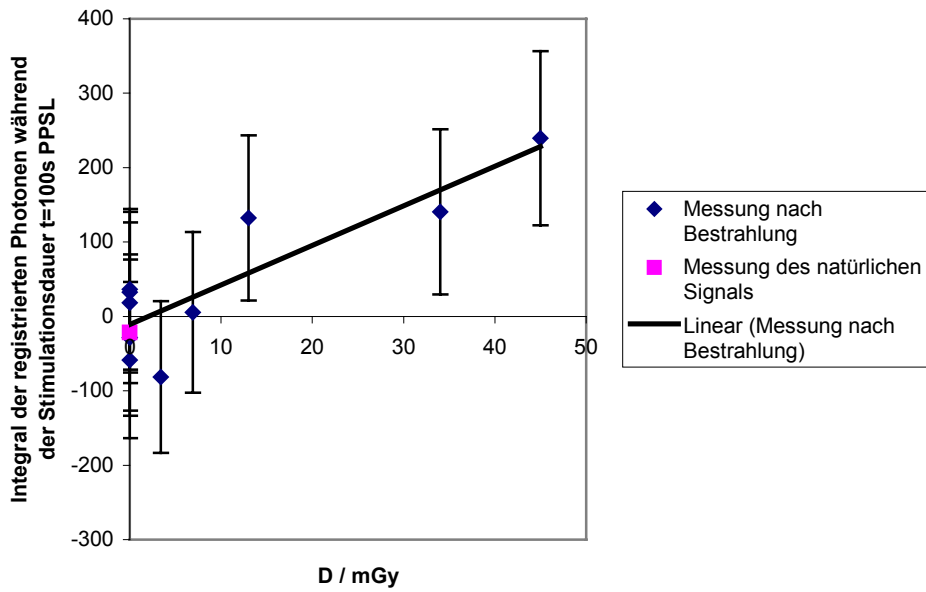
Probe Z



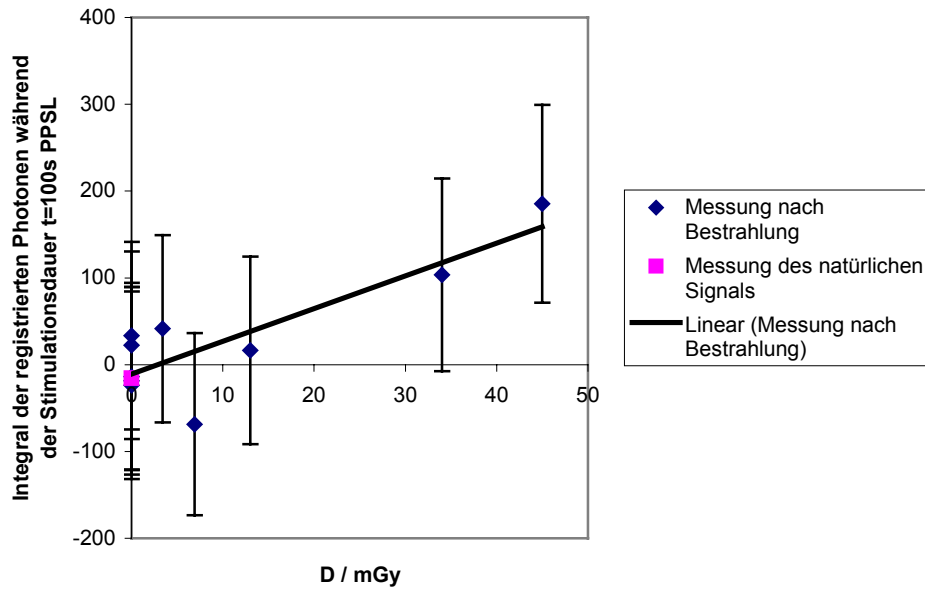
Probe Aich



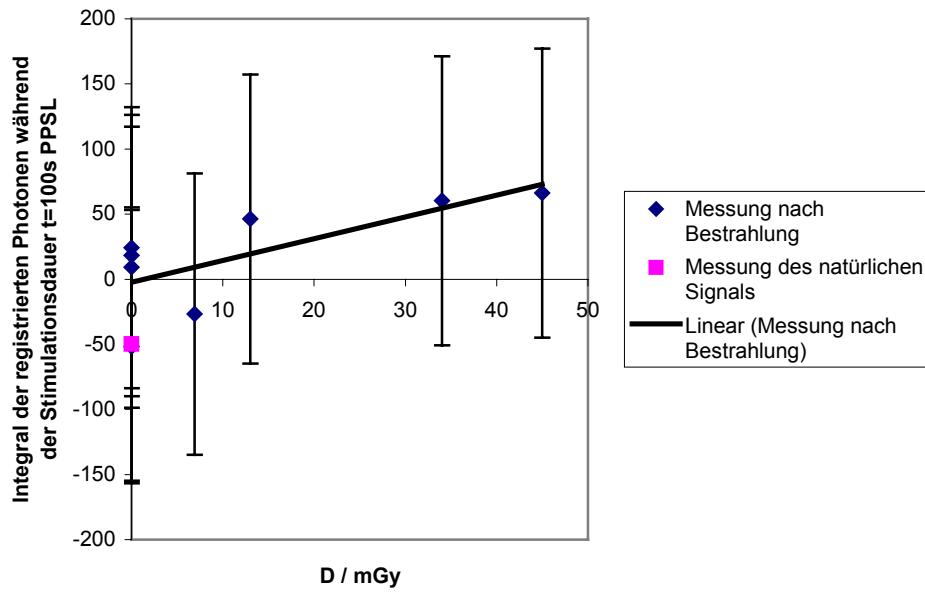
Probe ASMO



Probe KB



Probe P



A 2. PHYSIKALISCH-CHEMISCHE METHODEN DER DOSISREKONSTRUKTION

Eine Wirkung ionisierender Strahlung sind u.a. Veränderungen von Gewebezellen biologischer Organismen. Primär wird dabei die Elektronenkonfiguration im einzelnen Atom gestört. Die Folge davon kann das Aufbrechen von Molekülen sein und so eine Störung wichtiger Zellfunktionen nach sich ziehen oder zum Absterben von Zellen führen. Eine weitere Konsequenz kann das Aufbrechen der wichtigen Doppelhelix der DNS (Desoxyribonukleinsäure) sein, die als Bestandteil der Chromosomen im Zellkern jeder Zelle vorhanden ist und die Erbinformation eines Lebewesens beinhaltet. Eine große Anzahl solcher Brüche kann zu schädlichen Fehlentwicklungen wie Embryonalschäden (Missbildungen), Krebs oder Leukämie führen [BORSCH, 1996]. Das Risiko, d.h. die Wahrscheinlichkeit einer solchen Fehlentwicklung, steigt daher mit der Strahlenmenge, denen Personen ausgesetzt waren.

Hieraus ergibt sich die außerordentliche Bedeutung der Quantifizierung von Strahlungsmengen. Ein Maß für die Exposition von Materie gegenüber ionisierender Strahlung ist die Energiedosis. Unter ihr versteht man die Strahlungs-Energie, die je Masseneinheit absorbiert wurde:

$$D = \frac{\text{absorbierte Energie}}{\text{Massenelement}} = \frac{\Delta E}{\Delta m} \xrightarrow{\Delta m \rightarrow 0} \frac{dE}{dm}$$

Die Dosimetrie ist die Wissenschaft von der Ermittlung der Dosis und die dazu erforderliche Technik. Ihre Aufgabe in Bezug auf den Menschen ist es, die im Menschen und seinen Organen absorbierte Energie zu bestimmen. Dies ist der erste Schritt in Richtung einer Abschätzung der möglichen Gefährdung der betroffenen Person.

Wenn Personen, die nicht - in der Regel im Rahmen ihrer Berufsausübung - einer dauernden dosimetrischen Überwachung unterliegen, bei besonderen Ereignissen einer hohen Strahlenexposition ausgesetzt gewesen sein könnten, ist die Rekonstruktion der ggf. applizierten Dosen von großer Bedeutung. Von ihr hängt u.a. ab, ob und welche medizinischen Maßnahmen ergriffen werden müssen. Aber auch bei größeren Unfällen, bei denen eine größere Region betroffen sein kann, ist die Dosisrekonstruktion entscheidend für die Bewertung der Auswirkungen. Beispiele für derartige Ereignisse sind die Unfälle

im Mayak-Gelände in Rußland, der Unfall im Kernkraftwerk in Tschernobyl oder die Bombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki.

So weit möglich wird die retrospektive Dosimetrie an den betroffenen Personen selbst durchgeführt, da in diesem Fall genau die von dieser Person und ihren Organen absorbierte Energie ermittelt wird (**Personendosimetrie**).

Die Durchführung von Personendosimetrie ist jedoch nicht in jedem Fall möglich, beispielsweise, wenn die Bestrahlung zu lange Zeit zurückliegt oder wenn die betroffenen Personen nicht Probenmaterialien, die zur Dosisrekonstruktion tauglich sind, bei sich tragen. In solchen Fällen muss ein Ortsdosisfeld ermittelt werden (**Ortsdosimetrie**). Dabei handelt es sich um die Bestimmung der Dosisleistung an den verschiedenen Stellen der bestrahlten Region. Aus der Kenntnis dieses Feldes und der Information, wann und wie lange sich welche Person an welchem Ort des Feldes aufgehalten hat, kann auf die von der jeweiligen Person absorbierte Energie geschlossen werden.

Zur Dosisrekonstruktion gibt es verschiedene Möglichkeiten:

a) biologische Methoden: Dazu zählt z.B. die Untersuchung der Chromosomenaberrationen bei betroffenen Personen, also die Untersuchung der Veränderung von Anzahl und Struktur von Chromosomen. Die wichtigsten Methoden dieser Untersuchung sind:

- die Fluoreszenz-In-Situ-Hybridisierungs-Methode (FISH) und
- die Fluoreszenz-Plus-Giemsa-Methode (FPG, „Giemsa“ ist der Name eines bei der Methode zu verwendenden Reagenziums).

Die biologischen Methoden werden überwiegend in der Personendosimetrie eingesetzt.

b) physikalisch-chemische Methoden:

- die Thermolumineszenz (TL),
- die Photonen-stimulierte Lumineszenz (PSL),
- die Chemilumineszenz (CL) und
- die Elektronenspinresonanz (ESR).

Die physikalisch-chemischen Methoden werden überwiegend in der Ortsdosimetrie eingesetzt.

Die verschiedenen physikalisch-chemischen Methoden der Dosisrekonstruktion werden im folgenden kurz dargestellt:

A 2.1. Die Thermolumineszenz-Methode (TL)

a) Die physikalischen Abläufe bei der Strahlenexposition

Vgl. Kap. 2.

b) Mögliche Probenmaterialien

Für dieses Verfahren kommen nur Probenmaterialien in Frage, die über eine passende Gitterstruktur verfügen. Diese zeichnet sich dadurch aus, dass sie zum einen im Bändermodell der Energie zu einem Bandabstand zwischen Leitungs- und Valenzband führt, der die in Kap. 2 beschriebene Anregung bei Bestrahlung und Detektion zulässt, zum anderen Gitterfehler ausbildet, deren energetische Lage zwischen Leitungs- und Valenzband liegt.

In der Unfalldosimetrie sind mögliche Probenmaterialien im wesentlichen Quarz (SiO_2) und Feldspäte (z.B. Orthoklas: $\text{K}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$). Beide Minerale sind Bestandteil von Porzellan und gebrannten Tonobjekten. An weiteren Materialien wurde u.a. Aluminiumoxid (Al_2O_3) untersucht [BØTTER-JENSEN & MCKEEVER, 1996]; diese aber kommen unter normalen Umständen im Haushalt nicht vor und eignen sich aus diesem Grund nicht für die Dosisrekonstruktion an Umgebungsmaterialien.

c) Der natürliche Informationsverlust

Die in Fallen festgehaltenen Elektronen können, abhängig davon, auf welchem Energieniveau das jeweilige Elektron zwischen Leitungs- und Valenzband liegt, bei Ausbleiben einer äußeren Störung bis zu einigen 10^7 Jahren dort verweilen [AITKEN, 1992]. Der natürliche Informationsverlust, das „Fading“, ist also über für die Unfalldosimetrie

entscheidenden Zeiträume sehr gering bzw. die thermische Stabilität der Information ist bei gängigen Umwelttemperaturen sehr groß.

d) Die physikalischen Abläufe bei der Messung

Vgl. Kap. 2.

e) Messbarer Dosisbereich

Als messbarer Dosisbereich wird für diese Methode der Bereich von 0,1Gy bis hin zu einigen kGy [HASKELL *et al.*, 1993], mit Hilfe der predose-Technik²⁷, einer speziellen Methode der Thermolumineszenz, der Bereich von 0,01Gy bis 3Gy angegeben [STOLZ *et al.*, 1994].

f) Wiederholbarkeit der Messung

Da bei dieser Messmethode praktisch alle Elektronen rekombinieren, ist eine Wiederholung der Messung nicht möglich.

g) Erfahrungen

Unter den Methoden, die auch im Folgenden beschrieben werden, ist die Thermolumineszenz die Methode, bei der bereits am meisten Erfahrung gesammelt wurde. Sie wird routinemäßig angewandt und fand u.a. bei der Dosisrekonstruktion bei den Unfällen im Mayak-Gelände [GÖKSU *et al.*, 1996], beim Reaktorunfall in Tschernobyl [HÜTT *et al.*, 1993] und in Hiroshima und Nagasaki [HIGASHIMURA *et al.*, 1963] Anwendung.

²⁷ Technik, die die zunehmende Sensibilität einer Probe mit zunehmender Dosis berücksichtigt (vgl. [BAILIFF, 1994])

A 2.2. Die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL)

a) Die physikalischen Abläufe bei der Strahlenexposition

Vgl. Kap. 2.

b) Mögliche Probenmaterialien

Als mögliche Probenmaterialien werden auch hier gebrannte Tonprodukte und Porzellan verwendet, die gleichen wie bei Anwendung von TL.

c) Der natürliche Informationsverlust

Aufgrund der identischen Vorgänge bei der Bestrahlung und der Verwendung gleicher Probenmaterialien ist auch hier die thermische Stabilität sehr groß.

d) Die physikalischen Abläufe bei der Messung

Vgl. Kap. 2.

e) Messbarer Dosisbereich

Hinweise auf den Dosisbereich, der mit Photonen-stimulierter Lumineszenz ermittelt werden kann, gibt es in der Literatur für die Unfalldosimetrie bisher noch wenige. Die Nachweisgrenze liegt jüngsten Messungen (1997) zufolge für Porzellan als Probenmaterial bei einer Dosis von 0,04Gy [HÜBNER & GÖKSU, 1997]. Für Ton gibt noch keine Abschätzungen.

Für reinen Quarz konnte schon früher (1992) eine Dosis von 14Gy [GALLOWAY, 1992], für Feldspat von 28Gy nachgewiesen werden [GALLOWAY, 1992]. Somit ist der für die Unfalldosimetrie besonders wichtige Dosisbereich von einigen Gy in jedem Fall abgedeckt. Der Dosisbereich von einigen Gy ist der Bereich, in dem Strahlung für den Menschen einerseits gefährdend ist, in dem aber andererseits durch geeignete Therapie den betroffenen Personen noch geholfen werden kann.

f) Wiederholbarkeit der Messung

Da nicht alle Photonen sofort zu Rekombinationen führen, ist die Messung mit Methoden der Photonen-stimulierten Lumineszenz an derselben Probe solange wiederholbar, solange noch Elektronen in Fallen gebunden sind. Die Anzahl der Male, die sie sich wiederholen lässt, hängt von der jeweiligen Probe sowie der Lichtintensität (also der Photonenflußdichte), bzw. der Beleuchtungsdauer des anregenden Lichtes ab. Darüber hinaus aber ist eine weitere Messung nach einer oder mehreren PSL-Messungen noch mit der Methode der Thermolumineszenz möglich. Dies ist deshalb möglich, da die Elektronen in Fallen, deren energetischer Abstand größer ist als die Energie der stimulierenden Photonen, nicht ins Leitungsband angeregt werden können.

g) Erfahrungen

Erfahrungen liegen bisher beim Einsatz in der Unfalldosimetrie noch kaum vor. Erste Messungen wurden von Hübner 1996 vorgelegt [HÜBNER, 1996]. Es handelt sich dabei um Messungen an Porzellanisolatoren, die in Zusammenhang mit dem Reaktorunfall in Tschernobyl einer Exposition ausgesetzt wurden.

A 2.3. Die Chemilumineszenz-Methode (CL)

a) Die physikalischen Abläufe bei der Strahlenexposition

Auch hier werden bei Exposition Elektronen vom Valenzband ins Leitungsband angehoben und anschließend in Fallen eingefangen. Hierbei werden freie Radikale erzeugt. Dies sind Molekülbruchstücke mit ungepaarten Elektronen²⁸. Die Zahl der gebildeten Radikale ist proportional zur absorbierten Dosis.

b) Mögliche Probenmaterialien

Als geeignetes Detektormaterial hat sich normaler Haushaltszucker und Zuckerersatzstoffe, wie sie beispielsweise in festen Medikamenten (z.B. Tabletten) vorkommen,

²⁸ Durch die Anregung von Elektronen ins Leitungsband und somit deren örtliche Veränderung bleiben lokal Molekülbruchstücke mit einem ungepaartem Elektron zurück.

erwiesen.

Es wurden auch Untersuchungen an organischen Materialien (Horn, Fingernägel), die bei Strahlenexposition zur Bildung von Radikalen neigen, angestellt. Diese Materialien erwiesen sich aber aufgrund des hohen natürlichen Informationsverlustes durch spontane Rekombination, sowie ihrer geringen Löslichkeit und, damit verbunden, der geringen Lichtausbeute (Signalhöhe) nicht als tauglich [STOLZ *et al.*, 1994].

c) Der natürliche Informationsverlust

Natürlicher Informationsverlust ist über den Verlauf einiger Monate nur in geringem Maß zu beobachten [STOLZ *et al.*, 1994]. Eine so hohe thermische Stabilität wie im Fall der Photonen-stimulierten Lumineszenz oder der Thermolumineszenz und den Probenmaterialien Ton und Porzellan ist schon aufgrund der Tatsache, dass es sich um organisches Material handelt, nicht gegeben.

d) Die physikalischen Abläufe bei der Messung

Durch das Lösen des Detektormaterials in einem geeigneten Lösungsmittel werden Elektronen und Radikale frei und können wieder miteinander reagieren. Dadurch nimmt das Elektron einen energieärmeren Zustand ein; die Energiedifferenz wird in Form eines Photons ausgesandt und mittels eines Photoelektronenvervielfachers detektiert. Auch hier ist die Zahl der detektierten Photonen proportional der bei Exposition gebildeten Radikale und somit ein Maß für die absorbierte Dosis.

e) Messbarer Dosisbereich

Als messbarer Dosisbereich werden 0,5Gy bis 10Gy angegeben [STOLZ *et al.*, 1994].

f) Wiederholbarkeit der Messung

Eine Wiederholbarkeit der Messung ist nicht gegeben, da die Struktur des Detektormaterials und somit auch der Fallen durch das Lösen zerstört ist.

g) Erfahrungen

Es wurden bisher erste Erfahrungen an Haushaltszucker und Zuckerersatzstoff bei Bestrahlungen im Labor gesammelt.

A 2.4. Die Elektronenspinresonanz-Methode (ESR)

a) Die physikalischen Abläufe bei der Strahlenexposition

Die Elektronenspinresonanz beruht wie die Chemilumineszenz ebenfalls auf der Anregung von Elektronen ins Leitungsband, ihrem Einfang in Fallen und der damit verbundenen Erzeugung freier Radikale.

b) Mögliche Probenmaterialien

Als besonders gut geeignetes Material dafür hat sich Zahnschmelz erwiesen [STOLZ *et al.*, 1994].

c) Der natürliche Informationsverlust

Auch hier ist die thermische Stabilität über den Zeitraum einiger Monate groß [STOLZ *et al.*, 1994].

d) Die physikalischen Abläufe bei der Messung

Aufgrund des Elektronenspins der ungepaarten Elektronen, die an den Molekülbruchstücken nach der Bestrahlung zurückbleiben, besitzen die freien Radikale ein magnetisches Moment. Zur Messung werden zunächst die magnetischen Momente aller Radikale durch ein statisches Magnetfeld ausgerichtet. Dadurch entsteht eine Gesamtmagnetisierung der Probe.

Durch Überlagerung geeigneter elektromagnetischer Hochfrequenzfelder wird diese dann in Rotation versetzt und induziert in einer Empfängerspule eine messbare Wechselspannung. Sie ist proportional zur Magnetisierung, die ihrerseits der Anzahl der erzeugten

Radikale proportional ist, und somit ein Maß für die absorbierte Dosis.

e) Messbarer Dosisbereich

Als messbarer Dosisbereich wird 0,1Gy bis 20Gy angegeben [ALDRICH *et al.*, 1986].

f) Wiederholbarkeit der Messung

Bei dieser Methode ist sind die Messungen wiederholbar, da das Signal anders als im Fall der Thermolumineszenz durch die Messung nicht gelöscht wird.

g) Erfahrungen

Diese Methode wurde bereits, zwar nicht in solch großem Umfang wie die TL-Methode, aber dennoch in realen Fällen zur Dosisrekonstruktion eingesetzt, beispielsweise zur Untersuchung eines Strahlenunfalls in Kjeller (Norwegen) [REGULLA *et al.*, 1989].

A 2.5. Vergleich der Methoden

In Tab. 9 sind die wichtigsten physikalisch-chemischen Verfahren zur Dosisrekonstruktion vergleichend dargestellt. Aus dieser Zusammenstellung ergeben sich für die Anwendung der einzelnen Methoden nach heutiger Praxis die folgenden Kenntnisse:

a) Wiederholbarkeit der Messungen:

Dieser Punkt soll an erster Stelle genannt werden, da er den größten Vorzug der Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz gegenüber den anderen Messmethoden darstellt.

Die Möglichkeit einer mehrmaligen Messung bietet z.B. die Vorzüge

- der Kontrollmöglichkeit einer Messung,
- die Möglichkeit einer späteren Untersuchung unter anderen Gesichtspunkten

oder

- die Möglichkeit von Messungen in verschiedenen Labors.

Lediglich die Methode der Elektronspinresonanz teilt diesen Vorzug mit der Photonen-stimulierten Lumineszenz, übertrifft diese sogar noch durch uneingeschränkte Wiederholbarkeit. Dieser Vorzug der ESR gegenüber der PSL wird aber durch die eingeschränkte Verfügbarkeit geeigneter Probenmaterialien (siehe b)) wieder reduziert.

b) geeignetes Probenmaterial:

Bei dem für die jeweilige Messmethode geeignete Material zeichnen sich Ton und Porzellan, und somit die Methoden der Thermolumineszenz und der Photonen-stimulierten Lumineszenz, in besonderer Weise aus: Beide sind nämlich oft in Haushalten und Labors an vielen Stellen verfügbar, während Zucker, Zuckerersatzstoffe etc. - falls überhaupt verfügbar - in der Regel nur an einzelnen Stellen verwahrt sind. Zahnschmelz hingegen ist ein Probenmaterial, das mehr zur Personendosimetrie denn zur Ortsdosimetrie geeignet ist, doch auch dieses ist nicht unbedingt verfügbar.

c) Dosisbereich (Messbereich):

Wenn sich auch die Bereiche messbarer Dosis für die unterschiedlichen Methoden z.T. überlappen, so ist doch in jedem Dosisbereich aufgrund unterschiedlicher Empfindlichkeiten eine andere Methode geeignet. Und, abgesehen von TL und PSL, die sich beide bei Quarzen und Feldspäten als geeignet gezeigt haben, setzt eine jede Methode andere Probenmaterialien voraus. Daher ist es für die Unfalldosimetrie besonders wichtig, jede der Methoden zum routinemäßigen Einsatz zur Verfügung zu haben.

d) thermische Stabilität, natürlicher Informationsverlust:

Ein Vergleich der Methoden zeigt, dass die Methoden der Thermolumineszenz und der Photonen-stimulierten Lumineszenz sich gegenüber den Methoden der Chemilumineszenz und der Elektronspinresonanz für die in Frage kommenden Probenmaterialien durch erheblich geringeren natürlichen Informationsverlust auszeichnen. Gegenüber TL macht

vor allem die Möglichkeit der Messwiederholung und ihre - im Folgenden erläutert - um eine Größenordnung niedrigere untere Nachweisgrenze PSL zu einer vielversprechenden Methode.

e) Erfahrung:

Während die Methode der Thermolumineszenz zur Dosisrekonstruktion schon in vielen Fällen zum Einsatz gekommen ist und auch die Methoden der Elektronenspinresonanz und der Chemilumineszenz in einzelnen „echten“ Ereignisfällen geprüft werden konnten, liegt noch sehr wenig Erfahrung für die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz vor.

Tab. 9: Übersicht über die physikalisch-chemischen Methoden der Dosisrekonstruktion

Me- thode	Prinzip	geeignetes Probenmaterial	Dosisbereich	Aufwand	therm. Stabilität der Proben	Wieder- hol-barkeit	Erfahrung
PSL ^a	„Befreiung“ der in Fallen gefangenen Elektronen durch Anregung mittels optischer Energie Detektion der Photonen bei Rekombination vom Leitungs- ins Valenzband	Quarz und Feldspat in gebranntem Ton und Porzellan	bisher noch nicht evaluiert untere Nachweisgrenze einige 0,01Gy	bei Weiterentwicklung Einsatz vor Ort denkbar	bis 10 ⁷ Jahren	einige Male, einmalige-Kombination mit TL möglich	speziell bzgl. Unfalldosimetrie noch sehr wenig
TL ^b	„Befreiung“ der in Fallen gefangenen Elektronen durch Anregung mittels thermischer Energie Detektion der Photonen bei Rekombination vom Leitungs- ins Valenzband	Quarz und Feldspat in gebranntem Ton und Porzellan	0,1Gy bis einige kGy predose-Technik: 0,01Gy bis 3Gy	Messung im Labor	bis 10 ⁷ Jahren	nicht möglich	routine-mäßig einsetzbar
CL ^c	„Befreiung“ der in Fallen gefangenen Elektronen durch Lösen des Detektormaterials Detektion der Photonen bei Rekombination in das Molekül	Haushaltszucker Zuckerersatzstoffe	0,5Gy bis 10Gy	Messung im Labor	einige Monate	nicht möglich	gering
ESR ^d	Erzeugung der Magnetisierung der Probe durch Gleichrichten der magnetischen Momente, deren Anzahl proportional zur Dosis ist Detektion einer (durch Rotation der Magnetisierung) in eine Messspule induzierten Wechselspannung	Zahnschmelz	0,1Gy bis 20Gy	Messung im Labor	einige Monate	beliebig oft	routine-mäßig einsetzbar

^{a)} PSL =Photonen-stimulierte Lumineszenz

^{b)} TL =Thermolumineszenz

^{c)} CL =Chemilumineszenz

^{d)} ESR =Elektronspinresonanz

A 3. Die Methode der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL) als Anwendung in der Dosisrekonstruktion: Historie und Entwicklung

Obwohl der physikalische Effekt der Photonen-stimulierten Lumineszenz (PSL) schon seit langem bekannt ist, fand er erst in jüngerer Zeit Anwendung in der Dosisrekonstruktion.

Der Effekt der Lumineszenz - in diesem Falle der Thermolumineszenz TL - wurde erstmals von Boyle 1664 bei einem Diamanten, den er an seinem Körper erwärmte, beobachtet und beschrieben [BOYLE, 1664]. Dennoch fand sich noch lange Zeit weder eine wissenschaftliche Erklärung noch eine Anwendung für das entdeckte Phänomen. Zu Beginn des 20. Jahrhunderts jedoch änderte sich dies schlagartig: Nach der Entdeckung der ionisierender Strahlung (1895: Entdeckung der sog. X-Strahlung (Röntgenstrahlung) durch Röntgen; 1896: Entdeckung der Radioaktivität durch Becquerel) wurde das neue Instrument der Strahlung von vielen Forschern mit Begeisterung aufgegriffen, was eine Flut neuer Erkenntnisse in vielen akademischen Bereichen auslöste.

Auf dem Bereich der Mineralogie wurde bald die enge Verzahnung zwischen der Exposition eines Minerals gegenüber radioaktiver Strahlung und seiner Farbe erkannt sowie die Erkenntnis gewonnen, dass diese Farbe durch Erhitzen gebleicht oder gänzlich gelöscht werden kann [DOELTER, 1910; MEYER *et al.*, 1914]. Aus diesen Beobachtungen wurde eine Theorie entwickelt, die sowohl den Effekt der Verfärbung bei Exposition gegenüber radioaktiver Strahlung als auch den Effekt der Entfärbung durch Einwirken von Hitze beschreibt: Die Färbung der Minerale wird demnach durch die Ionisierung einzelner Atome und den Einfang der dabei erzeugten freien Elektronen an Kristallfehlern herbeigeführt. Die Entfärbung andererseits hängt mit der Befreiung der Elektronen von den Kristallfehlern und ihrer Rückführung zu den Ausgangsatomen zusammen [LIND *et al.*, 1923]. Diese Theorie besitzt in ihren Grundzügen auch heute Gültigkeit.

Eine vollständige theoretische Beschreibung der Phänomene, die im Stande ist, den Transport der Elektronen von den Ausgangsatomen zu den Kristallfehlern ebenfalls zu erklären, macht das Verständnis der energetischen Bandstruktur (vgl. Kap. 2.1) von Kristallen unabdingbar; sie wurde nach der Entwicklung der Quantenmechanik durch

Heisenberg 1925 [HEISENBERG, 1925] und Schrödinger 1926 [SCHRÖDINGER, 1926a, 1926b, 1926c, 1926d, 1926e] möglich und 1929 erstmals von Bloch durch Anwendung quantenmechanischer Prinzipien auf ideale Kristalle hergeleitet [BLOCH, 1928].

In dem Bemühen, die neu entwickelten Theorien an einer möglichst großen Zahl von Mineralen in all ihren Konsequenzen nachzuweisen, wurde zu Beginn der 30-er Jahre ein Messverfahren entwickelt, das im Stande ist, die Effekte mehrerer verschiedenartiger Kristallfehler nachzuweisen. Es handelt sich dabei um die Aufnahme sog. Glowkurven (d.h. das Heizen der Messprobe entlang einer bestimmten, zuvor definierten Temperaturkurve) [URBACH, 1930]. Dieses Messprinzip wird auch heute und auch in der vorliegenden Arbeit angewandt.

Eine quantitativer Vergleich der verschiedenen Lichtsummen²⁹, die aus verschiedenartigen Kristallfehlern resultieren und sich in unterschiedlichen Maxima der Glowkurve niederschlagen – dies war gewünscht, um Information über Art und Dichte von Kristallfehlern zu erhalten – war zunächst aufgrund mangelnder technischer Möglichkeiten noch sehr schwierig. Dies änderte sich mit Entwicklung des Szintillationszählers in den 40-er Jahren. Durch die Entwicklung von Szintillationszählern, die das Zählen einzelner Lichtquanten ermöglichen, konnten nun Anwendungsfelder für den Effekt der Lumineszenz erschlossen werden.

1953 wurde die Anwendung des Lumineszenz-Effektes zur Bestimmung von Strahlendosen vorgestellt: als Anwendung schlug er u.a. dosimetrische Untersuchungen anhand von künstlichen Kristallen sowie die Bestimmung von Strahlendosen zur Untersuchung und Altersbestimmung („Datierung“) von Keramik vor [DANIELS *et al.*, 1953]. Bis zu diesem Zeitpunkt wurde in allen Untersuchungen die Lumineszenz durch Erhitzen des Probenmaterials herbeigeführt; es handelte sich somit bis dorthin stets um Thermolumineszenz (TL).

1956 wurde als Weiterführung früherer Arbeiten über durch Photonen stimulierte Fluoreszenz [LEVERENZ, 1950] erstmals die Möglichkeit der Stimulation mittels Photonen vorgestellt, was zum Begriff der Photonen-stimulierten Lumineszenz PSL ein [ANTONOV-ROMANOVSKY *et al.*, 1956]. Mit einer Arbeit mit Überlegungen und ersten Messungen zur Dosisrekonstruktion schuf Antonov-Romanovsky die Grundlage für die heutige

²⁹ Lichtsumme: räumlich und zeitliches Integral des Flusses der Photonen; heute üblicherweise je nach Photonenenergie mit Szintillions- oder Halbleiterzählern gemessen, früher über die Helligkeit abgeschätzt.

Anwendung der Photonen-stimulierten Lumineszenz für dosimetrische Messungen. Bei diesem ersten Einsatz von PSL zum Ziele der Dosisrekonstruktion wurde als Probenmaterial (ZnS-Cu, Pb), (SrS-Ce, Sm) und (SrS-Eu, Sm) verwendet; es handelt sich dabei um ZnS-, bzw. SrS-Kristalle, die in geringem Maße mit Kupfer und Blei, Cer und Samarium, bzw. Europium und Samarium dotiert wurden.

Trotz dieser ersten Arbeit zur Dosisrekonstruktion mithilfe der Photonen-stimulierten Lumineszenz wurde dennoch zunächst ausschließlich die Thermolumineszenz zur geologischen Datierung und Echtheitsprüfung archäologischer Fundstücke angewandt. Das liegt daran, dass bei der Nutzung des TL-Effektes zur Anregung der in Fallen befindlichen Elektronen kein Licht notwendig ist und somit zwischen stimulierenden und emittierten Photonen nicht unterschieden werden muss. Abgesehen von Ausnahmen, die apparativ bedingt und nicht unterdrückbar sind („Rauschen“), tragen alle detektierten Photonen zum Signal bei. Zur Messung mittels PSL hingegen müssen die zur Stimulation eingestrahlenen Photonen von den emittierten Photonen, die das eigentliche Signal darstellen, unterschieden werden. Dies bedeutet, dass für die Nutzung der PSL gegenüber der TL ein zusätzlicher apparativer Aufwand erforderlich ist.

Für die geologische Datierung (Datierung von Sedimenten) - eine der Hauptanwendungen - erwies die TL aber nur als bedingt tauglich. Bei der geologischen Datierung handelt es sich auch um eine Dosisrekonstruktion. Die Dosis, die in diesem Fall bestimmt wird ist dabei die Altersdosis, also die Dosis, die sich durch die natürliche Bestrahlung über die Jahrtausende akkumuliert hat. Als Beginn dieser Zeit gilt der Zeitpunkt, an dem die Probe dem Sonnenlicht ausgesetzt war, also bei der Sedimentation. Eine Exposition an Sonnenlicht kommt optischer Stimulation gleich, d.h. die Elektronen, die in Fallen verweilen, werden aus den Fallen gehoben, d.h. sämtliche frühere Information wird nullgesetzt. Zur Anwendbarkeit der Methode muss die Probe dann bedeckt werden und darf bis zur Bergung und Messung nicht wieder dem Sonnenlicht ausgesetzt sein. Bei der Exposition der Probe an Sonnenlicht in der Vergangenheit wird möglicherweise die Information nicht vollständig gelöscht, d.h. möglicherweise sind „zum Zeitpunkt Null“ nicht alle Elektronen aus ihren Fallen gehoben worden. Eine Messung mit TL hebt aber praktisch alle Elektronen aus den Fallen. Die Folge davon ist eine Überschätzung des Alters. Dies führte zumal für geologische Datierungen zu dem Bestreben, eine Messmethode zu entwickeln, die auf der Stimulation durch Photonen beruht, da diese den physikalischen Abläufen beim Nullstellungsprozess entspricht und somit die Gefahr einer Fehlinterpretation des Messergebnisses unterdrückt wird.

1985 gelang Huntley die Dosisrekonstruktion mit Hilfe von PSL zum Ziel geologischer Datierung von Sedimenten [Huntley *et al.*, 1985]. Der wesentliche Entwicklungsschritt war die extrem schmalbandige Stimulation durch Verwendung eines Lasers - die 514nm-Linie eines Argon-Ionen-Lasers ($E \approx 2,4\text{eV}$; grünes Licht) - und die Wahl geeigneter Filter zur Detektion. Die Anwendbarkeit des PSL-Effektes zur Dosisrekonstruktion wurde mit dieser Untersuchung erstmals unter Beweis gestellt.

Seit der ersten Anwendung durch Huntley 1985 wurde eine Vielzahl von Studien durchgeführt und so die Methode bzgl. möglicher Wellenlängenbereiche verfeinert und auf verschiedene Probenmaterialien ausgeweitet (u.a. [POOLTON, BØTTER-JENSEN & RINK, 1995], [POOLTON, BØTTER-JENSEN & JUNGNER, 1995], [BØTTER-JENSEN, MARKEY, POOLTON & JUNGNER, 1996]). Auch für Anwendungen in der Dosimetrie wurden weitere mögliche Probenmaterialien gefunden, wovon mit Kohlenstoff dotiertes Aluminiumdioxid „ $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ “ das bisher erfolg- und aussichtsreichste ist. Dennoch bleiben keramische Materialien in der Unfalldosimetrie von Bedeutung [BAILIFF, 1997].

Bei keramischen Probenmaterialien ist zwischen Grob- und Feinkeramik zu unterscheiden: unter Grobkeramik fallen im wesentlichen Mauer- und Dachziegel, unter Feinkeramik Porzellan (Definition: vgl. Kap. 3.1). Bei grobkeramischen Materialien sind verschiedene Herangehensweisen an die Dosisrekonstruktion möglich: entweder man stützt sich auf den grobkörnigen Mineralanteil der Probe oder auf den feinkörnigen. Bei dem grobkörnigen Anteil kann nach dem Quarz- oder Feldspatanteil unterschieden werden. Im Fall des feinkörnigen Anteils ist eine Trennung der Minerale technisch nicht möglich; er besteht neben Quarz und Feldspat im wesentlichen aus Tonmineralen (Kaoliniten).

Die meisten Anwendungen in der Dosisrekonstruktion an grobkeramischen Probenmaterial wurden in den letzten Jahren mittels des grobkörnigen Quarzanteils durchgeführt. Der Grund hierfür dürfte die in der Zwischenzeit sehr gut bekannten Eigenschaften von Quarz sein. Die Nachweisgrenze liegt bei etwa 10mGy [BAILIFF, 1999]. Die Berücksichtigung des grobkörnigen Feldspatanteils wurde gegenüber der Verwendung des Quarzanteils vernachlässigt. Dies liegt vermutlich an dem - für Feldspat gelegentlich auftretenden - Phänomen des athermischen Signalverlusts (siehe Kap. 2.3.2), da dieser Effekt noch nicht genau verstanden ist und daher unvorhergesehen auftritt.

Durch die Etablierung der Photonen-stimulierten Lumineszenz wurden aber vor allem Messverfahren vorangetrieben und verbessert. So wurde beispielsweise eine Vielzahl von Messprotokollen entwickelt, die die Dosisevaluierung an ein und derselben Teilprobe

vornehmen, sog. „**Single-Aliquot-Verfahren**“ [Aliquot (engl.): Teilprobe]. Photonenstimulierte Lumineszenz ist als Messmethode im Besonderen für diese Verfahren geeignet, da sie nicht zwingend eine Erhitzung des Probenmaterials zu sehr hohen Temperaturen erfordert und somit die Gefahr der Änderung der Messempfindlichkeit erheblich reduziert ist. Der besondere Vorzug von Single-Aliquot-Verfahren ist, dass es bei der Auswertung keines Normierungsverfahrens der verschiedenen Teilproben bedarf und die Messunsicherheit somit erheblich reduziert werden kann.

Als besonderes Messprotokoll ist dabei das **SAR-Protokoll** (Single Aliquot Regeneration) hervorzuheben, das im Stand ist auf evtl. Empfindlichkeitsänderungen zu prüfen und zu korrigieren.

Die neuesten Entwicklungen beziehen sich auf Proben, die bei ihrer Produktion möglicherweise unzureichend erhitzt wurden. Dies trifft in der Regel bei Beton zu, da hier nur ein Teil des gesamten Materials überhaupt erhitzt wird. Die Herangehensweise ist, dass man einzelne Körner untersucht und vergleicht. Dies bedeutete eine erhebliche Fortentwicklung sowohl in der technischen Ausstattung als auch in den Messverfahren, den sog. „**Single-Grain-Verfahren**“. An beiden ist die Entwicklung noch nicht abgeschlossen.

Abbildungen

Abb. 1:	Bändermodell: Darstellung als Funktion der erlaubten Energien über dem Wellenvektor \vec{k} (a : Gitterkonstante)	16
Abb. 2:	Beispiel einer Glowkurve	20
Abb. 3:	Rekombinationswege von in Fallen gefangenen Elektronen	21
Abb. 4:	Anzahl der in einem Kristall vorhandenen Phononen je Energieintervall nach dem Planckschen Strahlungsgesetz	23
Abb. 5:	Darstellung der Vorgänge im Bändermodell nach [HÜBNER, 1996]	23
Abb. 6:	Wellenlängenbereich des sichtbaren Lichtes	28
Abb. 7:	Beispiel einer Ausleuchtkurve	29
Abb. 8:	Das Hütt-Jaek-Tschonka-Modell für die infrarot stimulierte Lumineszenz des Feldspats	33
Abb. 9:	Zusammensetzung des gemessenen Signals aus Messuntergrund und dosisabhängiges Signal für a) Thermolumineszenz und b) Photonen-stimulierte Lumineszenz (simulierte Messkurven)	36
Abb. 10:	Bestimmung des dosisabhängigen Signals mittels PSL bei a) konstantem Messuntergrund und b) triftendem (hier: steigendem) Messuntergrund	38
Abb. 11:	Zeitlicher Verlauf von Stimulation und Emission von Photonen	39
Abb. 12:	Rekombination eines Elektrons mit Zwischeneinfang des Elektrons in dem Leitungsband nahen Fallen mit Angabe der Verweildauer im Leitungsband Δt_1 , bzw. in den dem Leitungsband nahen Fallen Δt_2	41
Abb. 13:	Zeitlicher Verlauf von Stimulation und Emission von Photonen unter Berücksichtigung des Überganges von Elektronen von Fallen in Rekombinationszentren in endlichen Zeiten	42
Abb. 14:	Additiv-Verfahren: Verlauf des Lumineszenz-Signals, aufgetragen über Vielfachen einer beliebigen Additiv-Dosis D_0	44

Abb. 15: Regenerativ-Verfahren: Verlauf des Lumineszenz-Signals, aufgetragen über Vielfachen einer beliebigen Regenerativ-Dosis D_0	46
Abb. 16: Das TL/PSL-Messgerät „RISØ TL-DA-12“	67
Abb. 17: Transmission des Filters BG38	69
Abb. 18: Transmission des Filters HA3-1	69
Abb. 19: Spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers (Hersteller: „Products for Research“, Modell 9325)	70
Abb. 20: Das SURRC-PPSL-Messgerät „SURRC Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) Irradiated Food Screening System“	71
Abb. 21: Spektrale Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers (Hersteller: „Electron Tubes Limited“, Modell 9829B18)	73
Abb. 22: Vorrichtung zur mechanischen Zerkleinerung des Probenmaterials	76
Abb. 23: Probe LBB: gemittelte Glowkurven (aus jeweils 4 Teilproben) für die Dosispunkte 0mGy, 250mGy, 500mGy, 750mGy und 1Gy (insgesamt 16 Teilproben; „Multiple-Aliquot“)	81
Abb. 24: Probe LBB: Glowkurven für die Dosispunkte 160mGy, 410mGy, 660mGy, 910mGy und 1160mGy, ermittelt an <i>einer einzigen</i> Teilprobe durch wiederholte Bestrahlungs-Mess-Zyklen („Single-Aliquot“); Überprüfung etwaiger Empfindlichkeitsänderungen durch Wiederholung der Messung des Dosispunktes 410mGy	83
Abb. 25: Probe LBB: Integral der Glowkurven über den Temperaturbereich für die verschiedenen Dosispunkte, Single-Aliquot-Verfahren an 4 verschiedenen Teilproben	84
Abb. 26: Probe LBB: Bestimmung der Energie des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus (siehe Text)	87
Abb. 27: Probe LBB: Bestimmung der Lebensdauer des Signals des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus	88
Abb. 28: Probe LBB: Messungen nach Bestrahlung mit 1Gy nach Vorheizen bei 160°C über Vorheizdauern von 0s, 30s, 60s, 90s und 120s: a) Glowkurven;	

b) Integral der Glowkurven über den Temperaturbereich von 160°C - 170°C	91
Abb. 29: Probe LBB: Reduktion des PPSL-Messsignals einer mit 12Gy bestrahlten Probe nach Messzyklen von jeweils 2min. bei 400°C	93
Abb. 30: Probe LBB: wiederholte Messung nach Bestrahlung mit 1Gy (Vorheizen bei 160°C über Vorheizdauern von 150s): a) Ausleuchtkurven; b) Integral der Ausleuchtkurven über die Stimulationsdauer $t=30s$	95
Abb. 31: Probe LBB: Dosis-Wirkungs-Beziehung bei Verwendung von PPSL (Vorheizen bei 160°C über 150s; Single-Aliquot-Verfahren): a) Dosisbereich bis 50mGy; b) Dosisbereich bis 5mGy	97
Abb. 32: Fiktives Beispiel für die Additiv-Methode	107
Abb. 33: Fiktives Beispiel für die Regenerativ-Methode	109

Tabellen

Tab. 1:	Auflistung der Proben	65
Tab. 2:	Signalgewinne durch Mineralientrennung	82
Tab. 3:	Empfindlichkeitsänderung des TL-Signals im Bereich von 250°C bis 300°C bei wiederholter Bestrahlung und Messung	84
Tab. 4:	Energien der mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Energieniveaus („Falltiefe“)	86
Tab. 5:	Lebensdauern des mit dem TL-Maximum bei 150°C verknüpften Signals	89
Tab. 6:	Ermittelte Nachweisgrenzen für die untersuchten Probenmaterialien	98
Tab. 7:	Ermittelte interne Dosisleistung der Proben	98
Tab. 8:	Lebensdauern des mit infraroter Stimulation verknüpften Signals	100
Tab. 9:	Übersicht über die physikalisch-chemischen Methoden der Dosisrekonstruktion	185

Literatur

AITKEN, M.J., (1985): *Thermoluminescence Dating*, Academic Press, London, Florida.

AITKEN, M.J., (1992): *Optical Dating*, *Quat. Sci. Rev.* 11, S. 127-131.

AITKEN, M.J., (1998): *An Introduction to Optical Dating*, Oxford University Press, Oxford, New York, Tokyo.

ALDRICH, J.E., & PASS, B., (1986): *Dental Enamel as an In Vivo Radiation Dosemeter: Separation of the Diagnostic X-Ray Dose from the Dose due to Natural Sources*, *Radiat. Prot. Dosim.* 17, S. 175-179.

ANTONOV-ROMANOVSKY, V.V., KEIRIM-MARCUS, I.B., POROSHINA, M.S., & TRAPEZNIKOVA, Z.A., (1956): *Dosimetry of Ionizing Radiation with the Aid of Infrared sensitive Phosphors*, USAEC Report AEC-tr-2435 pt1, S. 239-250.

BAILIFF, I.K., (1994): *The Pre-Dose Technique*, *Radiat. Meas.* 23, 2/3, S. 471-479

BAILIFF, I.K., (1997): *Retrospective Dosimetry with Ceramics*, *Radiat. Meas.* 27, 5/6, S. 923-941.

BAILIFF, I.K., & POOLTON, N.R.J., (1991): *Studies of Charge Transfer Mechanisms in Feldspar*, *Nature* 245, S. 143-144.

BAILIFF, I.K., BØTTER-JENSEN, L., CORRECHER, V., DELGADO, A., GÖKSU, H.Y., JUNGNER, H., & PETROV, S.A., (2000): *Absorbed Dose Evaluations in Retrospective Dosimetry - Methodological Developments Using Quartz*, Radiat. Meas. 32, S. 609-613.

BAYER, A., (2001): persönliche Mitteilung.

BLOCH, (1928): *Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern*, Z. Phys. 52, S. 555-600.

BORSCH, P., FEINENDEGEN, L.E., FELDMANN, A., MÜNCH, E., & PASCHKE, M., (1996): *Strahlenschutz - Radioaktivität und Gesundheit*, Bayer. Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen.

BØTTER-JENSEN, L., & MCKEEVER, S.W.S., (1996): *Optically Stimulated Luminescence Dosimetry Using Natural and Synthetic Materials*, Radiat. Prot. Dosim. 65, 1-4, S. 273-280.

BØTTER-JENSEN, L., DULLER, G.A.T., & POOLTON, N.R.J., (1994): *Excitation and Emission Spectrometry of Stimulated Luminescence from Quartz and Feldspar*, Radiat. Meas. 24, S. 531-534.

BØTTER-JENSEN, L., MARKEY, B.G., POOLTON, N.R.J., & JUNGNER, H., (1996): *Luminescence Properties of Porcelain Ceramics Relevant to Retrospective Radiation Dosimetry*, Radiat. Prot. Dosim. 65 (1-4), S. 369-372.

BOYLE, R., (1664): *Experiments and Considerations upon Colours with Observations on a Diamond that shines in the Dark*, Henry Harringham, London.

BRÖCKER, B., (1989): *dtv-Atlas der Atomphysik*, Deutscher Taschenbuch Verlag,

München.

BROCKHAUS, (1984): *Der große Brockhaus – Kompaktausgabe in 26 Bänden*, F.A.Brockhaus, Wiesbaden.

CHEN, R., & MCKEEVER, S.W.S., (1997): *Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena*, World Scientific Publishing, Singapore, River Edge, London.

CLARK, R.J., & BAILIFF, I.K., (1998): *Fast Time-Resolved Luminescence Emission Spectroscopy in some Feldspars*, Radiat. Meas. 29(5), S. 553-560.

DALHEIMER, A., GUGGENBERGER, R., HEIDE, L., & NIEDERMAYER, M., (2001): *Dosisrekonstruktion: Überblick über die physikalisch-chemischen Messverfahren*, in: Bayer, A., Leonardi, A., (Hrsg.): *Messen im Nuklearen Notfallschutz*, Verlag TÜV Rheinland, Köln, S. 319-320.

DANIELS, F., BOYD, C.A., & SAUNDERS, D.F., (1953): *Thermoluminescence as a Research Tool*, Science 117, S. 343-349.

DOBNER, A., (1984): *Tone, Mergel und Lehme des Quartär*, in: Weinig, H., Dobner, A., Lagally, U., Stephan, W., Streit, R., & Weinelt, W., (Hrsg.): *Oberflächennahe mineralische Rohstoffe von Bayern*, Geologica Bavarica 86, S. 482-489.

DOELTER, C., (1910): *Das Radium und die Farben*, Steinkopf, Dresden.

GALLOWAY, R.B., (1992): *Towards the Use of Green Light Emitting Diodes for Optically Stimulated Luminescence Dating of Quartz and Feldspar*, Meas. Sci. Technol. 3, S. 330-335.

GARLICK, G.F.J., & GIBSON, A.F., (1948): *The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicon Phosphors*, Proc. R. Soc. London A60, S. 574-590.

GÖKSU, H.Y., (2000): persönliche Mitteilung.

GÖKSU, H.Y., HEIDE, L., BOUGROV, N.G., DALHEIMER, A., MECKBACH, R., JACOB, P., (1996): *Depth Dose Distribution in Bricks Determined by Thermoluminescence and by Monte-Carlo Calculation for External γ -Dose Reconstruction*, Appl. Radiat. Isot. 47/4, 433, 1-4, S. 273-280.

HASKELL, E.H., (1993): *Accident Dosimetry Using Environmental Materials: The Role of Thermoluminescence*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 21, 1, S. 87-93.

HEISENBERG, W., (1925): *Über die quantentheoretische Umdeutung kinematischer und mechanischer Beziehungen*, Z. Phys. 33, S. 879-893.

HIGASHIMURA, T., ICHIKAWA, Y., & SIDEI, T., *et al.*, (1963): *Dosimetry of Atomic Bomb Radiation by Thermoluminescence of Roof Tiles*, Science 139, S. 1284-1285.

HOCHHÄUSER, E., (2001): persönliche Mitteilung.

HÜBNER, S., (1996): *Retrospektive Dosimetrie mit optisch stimulierter Lumineszenz (OSL)*, Diplomarbeit an der Universität Regensburg.

HÜBNER, S., & GÖKSU, H.Y., (1997): *Retrospektive Dosimetrie Using the OSL-predose Effect in Porcelain*, Appl. Radiat. Isot. 48, 9, S. 1231-1235.

HUNTLEY, D.J., GODFREY-SMITH, D.I., & THEWALT, M.L.W., (1985): *Optical Dating of Sediments*, Nature 313, S. 105-107.

- HÜTT, G., JAEK, I., & TCHONKA, J., (1988): *Optical Dating: K-Feldspars Optical Response Stimulation Spectra*, Quat. Sci. Rev. 7, S. 381-385.
- HÜTT, G., BRODSKI, L., BAILIFF, I.K., GÖKSU, H.Y., HASKELL, E.H., JUNGNER, H., & STONEHAM, D., (1993): *Accident Dosimetry Using Environmental Materials Collected from Regions Downwind of Chernobyl: A Preliminary Evaluation*, Radiat. Prot. Dosim. 47, 1/4, S. 307-311.
- INFORMATIONSZENTRUM TECHNISCHE KERAMIK, (1999): *Brevier Technische Keramik*, Hrsg. Informationszentrum Technische Keramik, Verband der Keramischen Industrie e.V., Fahner Verlag, Lauf a. d. Pegnitz.
- JACOB, P., (2001): *Retrospektive Bestimmung von ionisierenden Strahlenexpositionen*, in: Mück, K., Hefner, A., Vana, N. (Hrsg.): *Strahlenschutz für Mensch und Gesellschaft im Europa von morgen*, Verlag TÜV Rheinland, Köln, S. 3-8.
- KALVIUS, G.M., LUCHNER, K., & VONACH, H., (1985): *Physik IV – Physik der Atome und Moleküle, Physik der Wärme*, R. Oldenbourg Verlag, München, Wien.
- KITTEL, C., (1991): *Einführung in die Festkörperphysik*, R. Oldenbourg Verlag, München, Wien.
- KOPITZKI, K., (1989): *Einführung in die Festkörperphysik*, B.G. Teubner, Stuttgart.
- KRBETSCHKE, M.R., (2001): persönliche Mitteilung.
- KUHLING, H., (1988): *Taschenbuch der Physik*, Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt/Main.

- LENK, R., (1989): *Brockhaus abc der Physik*, VEB F.A.Brockhaus Verlag, Leipzig.
- LEVERENZ, H.W., (1950): *An Introduction to Luminescence of Solids*, Wiley, New York.
- LEVY, P.W., (1985): *Thermoluminescence Kinetics in Materials Exposed to the Low Dose Applicable to Dating and Dosimetry*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 10, S. 547-556.
- LIND, S.C., & BARDWELL, D.C., (1923): *The Colouring and Thermophosphorescence Produced in Transparent Minerals and Gems by Radium Radiation*, Am. Mineralogist, 8, S. 171-180.
- MCKEEVER, S.W.S., (1985): *Thermoluminescence in Solids*, Cambridge University Press, Cambridge, New York, Melbourne.
- MCKEEVER, S.W.S., & CHEN, R., (1997): *Luminescence Models*, Radiat. Meas. 27, 5/6, S. 625-661.
- MEYER, S., & PRZIBRAM, K., (1914): *Über die Verfärbung von Salzen durch Becquerelstrahlen und verwandte Erscheinungen*, Sitzberichte der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Classe der Kaiserlichen Akademie der Wissenschaften in Wien, 123, IIa, S. 653-663.
- NIEDERMAYER, M., GÖKSU, H.Y., DALHEIMER, A., & BAYER, A., (2000): *Infrared (IR) Stimulated Luminescence from Modern Bricks in Retrospective Dosimetry Applications*, Radiat. Meas. 32, S. 825-832.
- NIEDERMAYER, M., HEIDE, L., GUGGENBERGER, R., & DALHEIMER, A., (2000): *Dosisleistungskalibrierung der β -Quelle (Sr-90) im TL-Meßgerät „TL-DA 12“ unter Verwendung der Feinkorn-Präparation*, Interner Arbeitsbericht des Bundesam-

tes für Strahlenschutz, Fachbereich Angewandter Strahlenschutz, IAS-IB-01
(2000).

NOACK, W., (1998): *Ziegellexikon*, Veröffentlichung des Ziegelforum e.V., München.

POOLTON, N.R.J., BØTTER-JENSEN, L., & JOHNSEN, O., (1995): *Thermo-Optical Properties of Optically Stimulated Luminescence in Feldspars*, Radiat. Meas. 23, S. 613-616.

POOLTON, N.R.J., BØTTER-JENSEN, L., & JUNGNER, H., (1995): *An Optically Stimulated Luminescence Study of Porcelain Related to Radiation Dosimetry*, Radiat. Meas. 24(4), S. 543-549.

POOLTON, N.R.J., BØTTER-JENSEN, L., & RINK, W.J., (1995): *An Optically Stimulated Luminescence Study of Flint Related to Radiation Dosimetry*, Radiat. Meas. 24(4), S. 551-555.

RANDALL, J.T., & WILKINS, M.H.F., (1945a): *Phosphorescence and Electron Traps I, The Study of Trap Distributions*, Proc. R. Soc. London 184, S. 366-389.

RANDALL, J.T., & WILKINS, M.H.F., (1945b): *Phosphorescence and Electron Traps II, The Interpretation of Long-Period Phosphorescence*, Proc. R. Soc. London 184, S. 390-407.

REGULLA, D.F., & DEFFNER, U., (1989): *Dose Estimation by ESR Spectroscopy at a Fatal Radiation Accident*, Appl. Radiat. Isot. 40, 10-12, S. 1039-1043.

RICHTER, D., (2001): persönliche Mitteilung.

- RISØ, (1994): *The Automated Risø TL/OSL System Model TL/OSL-Da-12*, Gebrauchsanleitung, Risø National Laboratory, Roskilde.
- RÖMPP, (1999): *Römpp-Lexikon Chemie*, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York.
- RUPP, E., & FRIEDRICH, G., (1988): *Die Geschichte der Ziegelherstellung*, Hrsg. Bundesverband der Deutschen Ziegelindustrie e.V., Bonn.
- SACHS, L., (1992): *Angewandte Statistik*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.
- SANDERSON, D.C.W., & CLARK, R.J., (1994): *Pulsed Photostimulated Luminescence in Alkali Feldspar*, *Radiat. Meas.* 23, S. 633-639.
- SCHÄFFLER, H., BRUY, E., & SCHELLING, G., (2000): *Baustoffkunde*, Vogel Buchverlag, Würzburg.
- SCHALLER, G., (2001a): persönliche Mitteilung.
- SCHALLER, G., (2001b): persönliche Mitteilung.
- SCHRÖDINGER, E., (1926a): *Quantisierung als Eigenwertproblem. Erste Mitteilung*, *Ann. Phys.* 79, S. 361-376.
- SCHRÖDINGER, E., (1926b): *Quantisierung als Eigenwertproblem. Zweite Mitteilung*, *Ann. Phys.* 79, S. 489-527.
- SCHRÖDINGER, E., (1926c): *Quantisierung als Eigenwertproblem. Dritte Mitteilung*, *Ann. Phys.* 80, S. 437-490.

SCHRÖDINGER, E., (1926d): *Quantisierung als Eigenwertproblem. Vierte Mitteilung*, Ann. Phys. 81, S. 109-139.

SCHRÖDINGER, E., (1926e): *Über das Verhältnis der Heisenberg-Born-Jordanschen Quantenmechanik zur meinen*, Ann. Phys. 81, S. 734-756.

STEPHAN, G., (2001): *Dosisrekonstruktion: Biologische Methoden – Überblick über Messverfahren und Messkapazität*, in: Bayer, A., Leonardi, A., (Hrsg.): *Messen im Nuklearen Notfallschutz*, Verlag TÜV Rheinland, Köln, S. 321-329.

STOLZ, W., HÜTT, G., & GONSER, G., (1994): *Dosimetrie an Umgebungsmaterialien bei Strahlenunfällen*, Physik in unserer Zeit, 25/5, S. 229-234.

URBACH, F., (1930): *Zur Lumineszenz der Alkalihalogenide*, Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, Naturwiss.-Mathem. Kl. 139, S. 353-372.

WAGNER, R., (1980): *Grundlagen der statistischen Behandlung einfacher linearer Korrelationen*, Vom Wasser 54, S. 273-292.

WINKLER, H., (1953): *Über Art und Wesen der Tone unter besonderer Berücksichtigung italienischer Hohlziegel-Tone*, Die Ziegelindustrie 8, S. 281-290.

WINTLE, A.G., (1973): *Anomalous Fading of Thermoluminescence in Mineral Samples*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 18, S. 541-545.

WINTLE, A.G., (1997): *Luminescence Dating: Laboratory Procedures and Protocols*, Radiat. Meas. 27, 5/6, S. 769-817.

ZÖLLER, L., (2001a): persönliche Mitteilung.

ZÖLLER, L., (2001b): persönliche Mitteilung.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Strahlenhygiene des Bundesamtes für Strahlenschutz und am Institut für Kerntechnik und Reaktorsicherheit der Universität Karlsruhe erstellt. Die wesentlichen experimentellen Arbeiten wurden dabei am Institut für Strahlenschutz angefertigt, wofür ich dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) meinen Dank schulde.

Herrn Prof. Dr. Anton Bayer sei für die zur Verfügungstellung des interessanten Aufgabengebietes, für seine Betreuung sowie für die Übernahme des Korreferates herzlich gedankt. In gleicher Weise möchte ich Herrn Priv. Doz. Dr. Volker Heinzl vom Institut für Kerntechnik und Reaktorsicherheit der Universität Karlsruhe für die Übernahme des Korreferates, für seine Hilfen beim Zurechtfinden in den „Karlsruher Bräuchen“ und für viele Tipps danken. Schließlich bin ich Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. mult. Dan Gabriel Cacuci für die Übernahme des Hauptreferates zu Dank verpflichtet.

Weiterhin möchte ich mich bei Herrn Dr. Andreas Dalheimer vom BfS, Berlin, für seine freundschaftliche Unterstützung und Frau Dr. Yeter Göksu von der „GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit“ in Neuherberg für ihre Hilfe, für viele fruchtbare Diskussionen und wertvolle Ratschläge danken.

Ein herzlicher Dank ergeht an Herrn Prof. Dr. David Sanderson für die wissenschaftliche sowie an Frau Dr. Lorna Carmichael und Herrn Simon Murphy für die technische Einführung in die Geheimnisse der gepulsten Photonen stimulierten Lumineszenz.

Herrn Dr. Günther Schaller danke ich für viele angeregte Gespräche, in denen er mir in bodenkundlichen und geologischen Fragen wertvolle Unterstützung gab, sowie Herrn Dr. Martin Steiner und Herrn Dr. Christopher Strobl für viele fruchtbare Diskussionen.

Frau Katja Viehl und Frau Andrea Sontheim möchte ich herzlich für ihre Hilfe bei der Probenbeschaffung danken.

Vielen Dank auch an Frau Elizabeth Sharp für ihre Unterstützung „vor Ort“.

Ein herzliches Dankeschön allen Kollegen vom Institut für Strahlenhygiene des BfS sowie den Kollegen aus der Arbeitsgruppe Risikoanalyse am Institut für Strahlenschutz der

GSF, die durch ihr besonders freundschaftliches Miteinander eine angenehme Arbeitsatmosphäre geschaffen haben.

Schließlich möchte ich es nicht versäumen, meiner Frau Fiona Niedermayer für ihre Hilfe und Ruhe, meinen Kindern Sophie und Maria für den Erhalt der Bodenhaftung und meinen Eltern für ihre Unterstützung danken.

Lebenslauf

- Persönliche Daten:** geb. am 13. April 1968 in München, verheiratet, 2 Kinder
- Schulausbildung:** **1974 - 1978**
Grundschule an der Droste-Hülshoff-Straße, München
- 1978 - 1987**
Erasmus-Grasser-Gymnasium, München
- Hochschulausbildung:** **1987 - 1991**
Studium der Physik an der Technischen Universität München
- 1991**
Studium der Physik an der Technischen Universität Chemnitz
- 1991 - 1995**
Studium der Physik an der Technischen Universität München
Abschluss: Dipl. Phys., Prädikat „gut“ (Note: 2,1)
- ab 1998**
Doktorarbeit am Institut für Kerntechnik und Reaktorsicherheit der Universität (TH) Karlsruhe
- Zivildienst:** **1995 - 1996**
- Berufstätigkeit:** **1990 - 1991 und 1991 - 1995**
ungeprüfte wissenschaftliche Hilfskraft an der Fakultät für Physik der TU München
- 1995**
wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut E15 (Schwerpunkt: Astro-Teilchenphysik) der Fakultät für Physik der TU München
- 1996 - 1999**
wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Strahlenhygiene des Bundesamtes für Strahlenschutz, Neuherberg
- ab 1999**
wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Strahlenschutz der GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg