KfK 2848 September 1979

Eine Modelltheorie, ihre experimentelle Überprüfung sowie die dosimetrische Anwendung der thermisch stimulierten Exoelektronenemission

H.-R. Doerfel Hauptabteilung Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE Hauptabteilung Sicherheit KfK 2848

EINE MODELLTHEORIE, IHRE EXPERIMENTELLE ÜBERPRÜFUNG SOWIE DIE DOSIMETRISCHE ANWENDUNG DER THERMISCH STIMULIERTEN EXOELEKTRONENEMISSION

Hans-Richard Doerfel

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe von der Fakultät für Elektrotechnik der Universität Karlsruhe (TH) genehmigte Dissertation

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

> Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Auf der Basis einer allgemeinen qualitativen Betrachtung der Potentialverhältnisse an der Oberfläche von Festkörpern wird eine neue Modelltheorie für die thermisch stimulierte Exoelektronenemission (TSEE) entwickelt. Die Modelltheorie erklärt die meisten der durch ältere Theorien nicht interpretierbaren Eigenschaften der strahleninduzierten TSEE, wie z.B. die Abnahme der Exoelektronenenergie mit zunehmender Stimulierungstemperatur oder die Existenz von TSEE-aktiven Elektronentraps mit negativer Elektronenaffinität. Darüberhinaus resultieren aus der Theorie einige neue charakteristische Eigenschaften der TSEE, die experimentell verifiziert werden. So wird z.B. die Existenz einer Energieschwelle für die Trapbesetzung sowie die Selbstbegrenzung der Trapbesetzung bei niedrigen Anregungsenergien nachgewiesen. Insbesondere folgt aus der Theorie, daß es sich bei der strahleninduzierten TSEE um einen reinen Oberflächeneffekt handelt.

Aus der Theorie ergeben sich einige spezielle dosimetrische Anwendungsmöglichkeiten, die an BeO- und LiF-Proben experimentell näher untersucht werden. Im Vordergrund steht dabei die Entwicklung eines halbempirischen Modells zur Berechnung der Energiedosis in der Oberflächenschicht von TSEE-Dosimetern. Mit Hilfe dieses dosimetrischen Modells kann der effektive Massenenergieabsorptionskoeffizient für jede beliebige Kombination von Dosimeter- und Abdeckmaterial berechnet werden. Darüberhinaus ergibt sich aus dem dosimetrischen Modell eine Methode zur Kompensation der Abhängigkeit des Dosimetermeßwerts von der Strahleneinfallsrichtung. Somit können TSEE-Sandwichdosimeter zur materialäquivalenten Energiedosisbestimmung in unbekannten Strahlenfeldern eingesetzt werden. A Model Theory, the Experimental Verification, and the Dosimetric Application of Thermally Stimulated Excelectron Emission

Abstract

On the basis of a general qualitative consideration of the solid state surface potentials a new model theory for thermally stimulated exoelectron emission (TSEE) is developed. The model theory explains most of the properties of radiation induced TSEE, which cannot be interpreted by older theories. These are for instance the decrease of exoelectron energy with increasing stimulation temperature and the existence of TSEE active electron traps having a negative electron affinity. Moreover, the theory gives as a result some new characteristic TSEE-properties, which are verified experimentally. Thus for instance the existence of an energy threshold for trap occupation and the selflimitation of trap occupation at low excitation energies are pointed out. In particular it follows from this theory that radiation induced TSEE is a real surface effect.

Some special dosimetric applications following from this theory are investigated experimentally using BeO- and LiF-samples. The main point of these investigations is the development of a semi empirical model to estimate the absorbed dose in the surface layer of TSEE dosimeters. On the basis of this dosimetric model the effective mass energy absorption coefficient of TSEE sandwich dosimeters can be calculated for any combination of dosimeter material and covering material. Moreover, the dosimetric model is yielding a method to compensate the dependence of the dosimeter reading on the direction of radiation incidence. Thus TSEE sandwich dosimeters can be applied for the material equivalent dose determination in unknown radiation fields.

Inhaltsverzeichnis

1. EINLEITUNG

| 2. | THEORIE DER THERMISCH STIMULIERTEN EXOELEKTRONEN- EMISSION (TSEE) | | | |
|----|--|---|----|--|
| | 2.1 | Grundlagen | 3 | |
| | 2.2 | Bekannte Emissionsmodelle | 3 | |
| | | 2.2.1 Quasistationäre Glühemission | 8 | |
| | | 2.2.2 Emission nach Auger-Rekombination | 10 | |
| | | 2.2.3 Emission mit Feldunterstürzung | 12 | |
| | 2.3 | Entwicklung einer neuen Modelltheorie | 12 | |
| | | 2.3.1 Potentialverhältnisse an Festkörper- oberflächen | 12 | |
| | | 2.3.2 Emission aus Oberflächentraps | 17 | |
| 3. | MESSMETHODE | | 19 | |
| | 3.1 | TSEE-Materialien | 19 | |
| | 3.2 | TSEE-Anregung | 21 | |
| | | 3.2.1 Photonen | 21 | |
| | | 3.2.2 Elektronen | 22 | |
| | 3.3 | TSEE-Auswertung | 24 | |
| 4. | EXPERIMENTELLE ÜBERPRÜFUNG DES EMISSIONSMODELLS | | 29 | |
| | 4.1 | Messungen | 29 | |
| | 4.2 | Glowkurvenanalyse | 41 | |
| | | 4.2.1 Randall-Wilkins-Shift | 41 | |
| | | 4.2.2 Iterationsmethode | 43 | |
| | | 4.2.3 Differentielle Methode | 46 | |
| | 4.3 | Diskussion des Emissionsmodells | 54 | |
| 5. | DOS I | METRISCHE ANWENDUNG DER TSEE | 60 | |
| | 5.1 | Dosimetrische Grundlagen | 60 | |
| | 5.2 | Dosimetrisches Modell der TSEE | 65 | |

I

| | | 5.2.1 TSEE-Sandwichdosimeter | 69 | | |
|----|-----------------------|---|------------|--|--|
| | | 5.2.2 TSEE-Mischpulverdosimeter | 72 | | |
| | 5.3 | Herstellung und Vorbehandlung der Dosimeter | 75 | | |
| | 5.4 | Experimentelle Untersuchung der dosimetrischen Eigenschaften | 77 | | |
| | | 5.4.1 Reproduzierbarkeit der Dosisanzeige | 80 | | |
| | | 5.4.2 Dosischarakteristik | 86 | | |
| | | 5.4.3 Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige | 90 | | |
| | | 5.4.4 Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige | 96 | | |
| | 5.5 | Diskussion des dosimetrischen Modells | 9 8 | | |
| 6. | ZUSA | MMENFASSUNG | 106 | | |
| | Abbildungsverzeichnis | | | | |
| | Verz | eichnis der Abkürzungen und Funktionen | 115 | | |
| | Literaturverzeichnis | | | | |

Seite

1. EINLEITUNG

Nach Einwirkung von ionisierender Strahlung sowie nach mechanischer Beanspruchung, Phasenumwandlungen oder chemischen Reaktionen, emittieren zahlreiche Metalle und Halbleiter spontan oder bei thermischer bzw. optischer Stimulierung niederenergetische Elektronen. Diese Erscheinungen wurden erstmals von Kramer in den Jahren zwischen etwa 1940 und 1950 untersucht [1-3]. Da die Emission im allgemeinen bei Temperaturen auftritt, die weit unter dem Bereich der Glühemission liegen, erhob sich bereits sehr früh die zentrale Frage, wie die Elektronen den Potentialwall an der Oberfläche des Emitters überwinden können. Kramer nahm zunächst an, daß die hierfür erforderliche Energie von exothermen Reaktionen an der Oberfläche geliefert wird. Diese Annahme führte zu der Bezeichnung "Exoelektronen".

Im Jahr 1949 hat Kramer erstmals auf die Anwendungsmöglichkeiten der Exoelektronenemission (EE) in der Dosimetrie ionisierender Strahlung hingewiesen [1]. Seitdem hat das Interesse an der EE ständig zugenommen. Der Emissionsmechanismus ist allerdings auch heute noch weitgehend ungeklärt [4-8]. Insbesondere konnte bisher nicht definitiv geklärt werden, ob die Exoelektronen aus dem Volumen des Festkörpers oder aus der Oberflächenrandschicht bzw. aus Sorptionsschichten stammen. Weiterhin hat man noch keine befriedigende Erklärung dafür gefunden, daß die Exoelektronen stets weit höhere kinetische Energien haben, als es aufgrund der Fermi-Statistik zu erwarten ist [9-12]. Besonders problematisch ist in diesem Zusammenhang der experimentelle Befund, daß die mittlere Energie der Exoelektronen mit zunehmender Stimulierungstemperatur abnimmt [9,11].

Seit etwa 1957 konzentrierten sich die Untersuchungen auf die thermisch stimulierte Exoelektronenemission (TSEE) nach Einwirkung ionisierender Strahlung. Es zeigte sich, daß die TSEE-Intensität unter bestimmten Voraussetzungen ein Maß für die Energiedosis in dem betreffenden Material ist. Allerdings besteht im allgemeinen kein linearer Zusammenhang zwischen diesen beiden Größen. Außerdem zeigt die TSEE-Intensität insbe-

sondere bei niederenergetischer Strahlung, eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Einstrahlungsrichtung. Abgesehen von Sondermessungen [13-15] ist die TSEE deshalb in der Dosimetrie bisher noch nicht zum Einsatz gekommen.

Aufgrund von neueren Ergebnissen [16] ist zu vermuten, daß es sich bei der TSEE um einen reinen Oberflächeneffekt handelt. Hieraus ergeben sich spezielle dosimetrische Anwendungsmöglichkeiten. So kann man beispielsweise das Energieabsorptionsverhalten von TSEE-Dosimetern dadurch modifizieren, daβ man die Dosimeteroberfläche während der Bestrahlung mit einem Fremdmaterial abdeckt. Auf diese Weise kann man erreichen, daß ein mit einem geeigneten Abdeckmaterial versehenes TSEE-Dosimeter in einem bestimmten Energiebereich das gleiche Absorptionsverhalten hat wie z.B. menschliches Gewebe oder ein anderes interessierendes Material. Ein solches materialäquivalentes TSEE-Dosimeter kann dann auch in Strahlungsfeldern mit unbekannten Spektren zur Energiedosisbestimmung eingesetzt werden. Allerdings ist eine gezielte Auswahl von geeigneten Abdeckmaterialien bisher nicht möglich, weil es an einer praktikablen Methode zur Berechnung der Energiedosis in der Emissionsschicht fehlt. Darüber hinaus fehlt es auch an einer geeigneten Methode zur Kompensation der Richtungsabhängigkeit des Meßwertes im unbekannten Strahlungsfeld.

In der vorliegenden Arbeit wird zunächst auf der Basis einer allgemeinen Betrachtung der Potentialverhältnisse an der Oberfläche von Festkörpern eine neue Modelltheorie der TSEE entwickelt. Mit Hilfe dieser Theorie soll anhand von Messungen nachgewiesen werden, daß es sich bei der TSEE von Lithiumfluorid und Berylliumoxid tatsächlich um einen Oberflächeneffekt handelt. Im Hinblick auf diesen Befund wird im weiteren Verlauf der Arbeit ein halbempirisches Modell zur Berechnung der Energiedosis in extrem dünnen Schichten entwickelt und experimentell auf seine Allgemeingültigkeit hin untersucht. Dieses dosimetrische Modell soll die gezielte Auswahl von Materialien zur Herstellung von TSEE-Sandwichdosimetern mit vorgegebenem Energieabsorptionsverhalten ermöglichen.

2. THEORIE DER THERMISCH STIMULIERTEN EXOELEKTRONENEMISSION (TSEE)

2.1. Grundlagen

Im periodischen Potential eines Kristalls ergibt sich aus der Schrödinger-Gleichung eine diskontinuierliche Energieverteilung für die Elektronenzustände. Die Schrödinger-Gleichung liefert nur für einzelne Energiebereiche (Energiebänder) oszillierende Lösungen. Dazwischen liegen Gebiete, für die keine Lösungen existieren, in denen also keine Elektronenzustände erlaubt sind (verbotene Zonen). Wenn ein Kristall gerade so viele Elektronen enthält, daß die Energiebänder ganz besetzt bzw. ganz leer sind, dann kann sich kein Elektron im elektrischen Feld bewegen und der Kristall ist ein Isolator. Sind ein oder mehrere Bänder teilweise besetzt (etwa zu 10 bis 90 %), dann ist der Kristall ein metallischer Leiter. In den übrigen Fällen spricht man von Halbleitern. Das oberste bei T = 0 K noch ganz besetzte Energieband bezeichnet man als Valenzband (VB) und das unmittelbar darüber liegende als Leitungsband (LB).

Bedingt durch die Wechselwirkung mit den thermischen Schwingungen des Kristallgitters wird die Energieverteilung der Elektronen bei Temperaturen T > 0 K modifiziert. Da die Elektronen dem Pauli-Prinzip gehorchen, gilt für die Wahrscheinlichkeit f*(E,T), daß ein erlaubter Zustand mit der Energie E im thermischen Gleichgewicht besetzt ist, die Fermi-Dirac-Verteilung

$$f^{*}(E,T) = \frac{1}{\exp\left[\frac{E-E}{KT}\right] + 1}$$
(1)

- E = Elektronenengie
- E_{r} = Fermi-Energie
- k = Boltzmann-Konstante

T = abs. Temperatur

Die Fermi-Energie E_F kennzeichnet hierbei das Niveau mit der Besetzungswahrscheinlichkeit 0,5. Bei metallischen Leitern liegt E_F im LB, bei Halbleitern und Isolatoren zwischen dem LB und dem VB.



Abb. 1: Energieverteilung der Elektronenzustände in einem Halbleiter mit Haftniveau

- E = Elektronenergie
- E_o = Pot.Energie von freien Elektronen im Außenraum
- E₁ = Pot.Energie von Leitungselektronen im Grundzustand
- E_T = Pot.Energie von Elektronen im Haftniveau
- ΔE_{L} = Aktivierungsenergie für Elektronenemission aus dem Haftniveau ins Leitungsband
- E_F = Fermi-Energie
- Φ = Austrittsarbeit (siehe Abschn. 2.2.1)

Bei realen Kristallen wird die Periodizität des Gitters durch die Begrenzungsflächen sowie durch Leerstellen, Versetzungen, Fremdatome und andere Baufehler gestört. Diese Störstellen erzeugen im periodischen Potential des Gitters positive oder negative Überschußladungen, die Elektronen oder Defektelektronen auf diskreten Energieniveaus an sich binden können. Man nennt diese Störstellen daher auch Elektronenhaftstellen oder Elektronentraps. Die energetische Lage des gebundenen Zustands bezeichnet man dementsprechend als Haftniveau und das gebundene Elektron als Haftelektron.

Für einen Halbleiter mit einem Haftniveau ergibt sich qualitativ die in Abb. 1 dargestellte Energieverteilung der Elektronenzustände. Bedingt durch die Lage des Ferminiveaus E_F ist das VB nahezu voll besetzt und das LB praktisch leer. Das Haftniveau bei $E_T = E_L - \Delta E_L$ ist im thermischen Gleichgewicht ebenfalls nahezu unbesetzt. Für die Wahrscheinlichkeit $\alpha(T)$, daß ein Haftelektron durch thermische Stimulierung aus dem Haftniveau in das LB gehoben wird, gilt:

$$\alpha(T) = K_{0} \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E_{L}}{kT}\right]$$
 (2)

K₀ = Frequenzfaktor △E_L = Aktivierungsenergie für Elektronenemission k = Boltzmann-Konstante T = abs. Temperatur

Der Frequenzfaktor K₀ ist dabei ein Maß für die Häufigkeit der Wechselwirkungsprozesse zwischen den Elektronen und den Gitterschwingungen bzw. deren Quasiteilchen, den Phononen. Im thermischen Gleichgewicht ist die Stimulierungsrate ebenso groß wie die Einfangrate. Dadurch behält die Haftelektronenkonzentration den durch die Besetzungswahrscheinlichkeit (Gl. (1)) vorgegebenen Wert bei. Wenn allerdings durch Einwirkung ionisierender Strahlung die Konzentration der Elektronen im LB erhöht wird, dann überwiegen die Übergänge vom LB in die Haftstellen und die Haftelektronenkonzentration steigt an (strahleninduzierte Haftstellenbesetzung). Nach dem Ende der Strahleneinwirkung geht die Konzentration der Elektronen im LB sofort wieder auf den durch Gl. (1) vorgegebenen Wert zurück, während die Haftelektronen-

konzentration bei Raumtemperatur zunächst noch den strahleninduzierten Wert beibehält. Bei Temperaturerhöhung (thermischer Stimulierung) werden die strahleninduzierten Haftelektronen allerdings wieder aus den Haftstellen befreit. Je nach Art der Haftstellen führt die thermisch stimulierte Freisetzung der Haftelektronen zu einer kurzfristigen Erhöhung der Leitfähigkeit des Materials, zu einer Emission von Lumineszenzstrahlung oder aber zur Emission von Exoelektronen. Häufig werden auch mehrere dieser Erscheinungen gleichzeitig beobachtet. Sowohl die thermisch stimulierte Leitfähigkeitserhöhung (TSL) als auch die Intensitäten der Thermolumineszenz (TL) und der thermisch stimulierten Exoelektronenemission (TSEE) sind ein Maß für die Konzentration der strahleninduzierten Haftelektronen und damit auch für die Energiedosis in dem betreffenden Material. Alle drei Effekte können daher prinzipiell zur Messung der Energiedosis herangezogen werden. Voraussetzung ist dabei allerdings, daß die Haftstellen einerseits bei Raumtemperatur weitgehend stabil sind (α (T=300 K) < 10⁻⁶ s⁻¹) und daß sie andererseits noch bei Temperaturen unterhalb des Bereichs der Glühemission entleert werden können (α (T=1000 K)> 1 s⁻¹).

Alle drei Effekte werden direkt oder indirekt von der Kinetik der Haftstellenentleerung bestimmt. Da diese Kinetik insbesondere bei der TSEE eine Identifizierung der Haftstellen ermöglicht, wird sie im folgenden etwas näher betrachtet.

Für die Haftelektronenkonzentration h = h(T,t) bei der Temperatur T zur Zeit t gilt die allgemeine Differentialgleichung

$$\frac{d}{dt}[h(T,t)] = \alpha(T) \cdot h(T,t)$$
(3)

Bei konstanter Temperatur T = T $_0$ läßt sich diese Differentialgleichung separieren und es ergibt sich

$$h(T_{o},t) = h_{o} \cdot \exp\left[-\alpha(T_{o}) \cdot t\right]$$
(4)

wobei h_0 die strahleninduzierte Haftelektronenkonzentration zur Zeit t = 0 darstellt. Wenn $\omega(T_0)$ die Wahrscheinlichkeit dafür ist, daß ein aus der Haftstelle befreites Elektron in den Außenraum emittiert wird, dann gilt speziell für die TSEE-Intensität bei konstanter Temperatur T₀

$$\varepsilon(\mathsf{T}_{o},\mathsf{t}) = \omega(\mathsf{T}_{o}) \cdot \left\{ -\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\mathsf{t}} \left[\mathsf{h}(\mathsf{T},\mathsf{t}) \right] \right\} = \mathsf{h}_{o} \cdot \omega(\mathsf{T}_{o}) \cdot \alpha(\mathsf{T}_{o}) \cdot \exp\left[-\alpha(\mathsf{T}_{o}) \cdot \mathsf{t} \right]$$
(5)

Bei variabler Temperatur muß die Funktion T = T(t) in die Gl. (3) eingeführt werden. So ergibt sich speziell bei zeitlinearer Temperaturerhöhung mit der Aufheizgeschwindigkeit q = $\frac{T}{t}$ die Differentialgleichung

$$q \cdot \frac{d}{dT} \left[h(T) \right] = -\alpha(T) \cdot h(T)$$
(6)

mit der Lösung

$$h(T) = h_0 \cdot \exp\left[-\frac{1}{q} \cdot \int_0^T \alpha(T) dT\right]$$
(7)

Demnach gilt für die TSEE-Intensität bei zeitlinearer Temperaturerhöhung

$$\varepsilon(T) = \omega(T) \cdot \left\{ -\frac{d}{dT} \left[h(T) \right] \right\} = \frac{1}{q} \cdot h_0 \cdot \omega(T) \cdot \alpha(T) \cdot \exp\left\{ -\frac{1}{q} \cdot \int_0^T \alpha(T) dT \right\}$$
(8)

Nach dieser Gleichung nimmt die TSEE-Intensität zunächst exponentiell mit der Temperatur zu, durchläuft ein Maximum und fällt dann sehr steil wieder ab. Dieser Temperaturverlauf der Emissionsintensität wird in Anlehnung an die Thermolumineszenz als Glowkurve bezeichnet. Wenn die Emissionswahrscheinlichkeit im gesamten Bereich der Glowkurve konstant ist ($\omega(T) = \omega_0$), dann gilt für die Fläche H unter der Glowkurve

$$H = \int_{0}^{\infty} \varepsilon(T) dT = h_{0} \cdot \omega_{0}$$
(9)

und Gl. (8) vereinfacht sich zu

$$\varepsilon(T) = \frac{1}{q} \cdot H \cdot \alpha(T) \cdot \exp\left\{-\frac{1}{q} \int_{0}^{T} \alpha(T) dT\right\}$$
(10)

Auf dieser Gleichung basieren alle Methoden zur Bestimmung der Aktivierungsenergie und des Frequenzfaktors aus experimentell gewonnenen Glowkurven (siehe Abschn. 4.2).

Die Glowkurvenanalyse ermöglicht unabhängig von den Auswertebedingungen eine Identifizierung der an der TSEE beteiligten Haftniveaus. Darüber hinaus ermöglicht sie bis zu einem gewissen Grad auch qualitative Aussagen über die Temperaturabhängigkeit der Emissionswahrscheinlichkeit $\omega(T)$. Sie sagt jedoch nichts über den Emissionsvorgang als solchen aus. Zur Beschreibung dieses Vorgangs sind in der Vergangenheit einige sehr unterschiedliche Modellvorstellungen entwickelt worden, die im folgenden diskutiert werden sollen.

2.2 Emissionsmodelle

2.2.1 Quasistationäre Glühemission

Ausgehend von der häufig beobachteten Parallelität von Thermolumineszenz (TL), thermisch stimulierter Leitfähigkeit (TSL) und thermisch stimulierter Exoelektronenemission (TSEE), ist insbesondere von Holzapfel [17-19] das folgende Modell vorgeschlagen worden. Die strahleninduzierten Haftelektronen werden bei thermischer Stimulierung aus den Haftstellen in das LB gehoben. Dort diffundieren sie als Leitungselektronen durch den Kristall (TSL), bis sie entweder in das VB zurückfallen oder mit anderen Störstellen rekombinieren (TL) oder aber als Exoelektronen in den Außenraum treten (TSEE). Die TSEE-Intensität ε wird in diesem Modell durch die Richardson-Gleichung beschrieben:

$$\varepsilon(T) = n_{L} \cdot \left[\frac{kT}{2\pi m_{eff}}\right]^{1/2} \cdot exp(-\frac{\phi}{kT})$$
(11)

nL = Dichte der Leitungselektronen
k = Boltzmann-Konstante
T = abs. Temperatur

 m_{eff} = Effektive Elektronenmasse ϕ = Austrittsarbeit (siehe Abb. 1)

Die Austrittsarbeit ϕ von TSEE-aktiven Materialien ist schon mehrfach gemessen worden. So findet z.B. Euler bei Messungen an Berylliumoxid Werte zwischen 2,15 eV und 2,4 eV [20]. Bei Zugrundelegung dieser Werte ändert sich der Exponentialterm in der Richardson-Gleichung im Bereich der verschiedenen Glowpeaks von Berylliumoxid (siehe Abschnitt 4.1) jeweils mindestens um den Faktor 3. Demnach ändert sich die Emissionswahrscheinlichkeit $\omega(T)$ so stark, daß eine Glowkurvenanalyse auf der Basis von Gl. (10) (Seite 7) keine konsistenten Ergebnisse liefern kann. Dies wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit noch näher untersucht (siehe Abschnitt 4.2).

Die von Holzapfel und Krystek [21] gefundene exakte Übereinstimmung der TL- und TSEE-Glowkurven von BaSO₄(Eu) und SrSO₄ (Eu) ist auf der Basis des Modells der quasistationären Glühemission nur dann zu verstehen, wenn einerseits die Austrittsarbeit dieser Materialien verschwindend gering ist und wenn andererseits keine Rekombinations- oder Retrappingeffekte vorliegen. Der Einfluß dieser Effekte ist von Kelly, Laubitz und Bräunlich [22] für die verschiedensten Parameterkombinationen berechnet worden. Diese Rechnungen zeigen, daß sowohl die TLals auch die TSEE-Glowkurven bereits bei relativ kleinen Rekombinations- bzw. Retrappingraten sehr stark deformiert werden.

Schlenk hat bei Messungen der TSEE von verschiedenen Metalloxiden (Al₂O₃, CuO, SnO, PbO und ZnO) sehr ähnliche Glowkurven gefunden [11,12]. Die Glowpeaks unterscheiden sich bei den einzelnen Materialien nur in ihrer relativen Intensität, nicht aber in ihrer Temperaturlage und in ihrer Form. Das bedeutet, daß die an der TSEE beteiligten Haftniveaus bei allen von Schlenk untersuchten Metalloxiden jeweils die gleichen Parameter ΔE_L und K_o haben müssen und daß keine Retrapping- oder Rekombinationseinflüsse vorliegen können. Dies legt wiederum

den Schluß nahe, daß die Haftstellen in der atmosphärischen Sorptionsschicht an der Oberfläche der verschiedenen Metalloxide liegen müssen. Schlenk hat darüber hinaus anhand einer Glowkurvenanalyse auch zeigen können, daß die Austrittsarbeit der verschiedenen Materialien keinen Einfluß auf die Emissionswahrscheinlichkeit für Exoelektronen haben kann.

Nach dem Modell der quasistationären Glühemission müßte die mittlere kinetische Energie der bei der Temperatur T emittierten Exoelektronen gleich kT sein. Bei Stimulierungstemperaturen unter 1000 K wären dies Energien unter 0,085 eV. Tatsächlich werden jedoch stets wesentlich höhere Energien gemessen. So findet Peterson [9] bei Messungen an Berylliumoxid mittlere Exoelektronenenergien von 0,5 eV. Kortov [10] mißt am gleichen Material sogar Energien bis zu 0,7 eV.

Auch müßte nach dem Modell der quasistationären Glühemission die mittlere Energie der Exoelektronen mit der Stimulierungstemperatur zunehmen, was ebenfalls durch das Experiment widerlegt wird. So gibt Schlenk [12] für Metalloxide einen Abfall der mittleren Exoelektronenenergie von 0,35 eV auf 0,15 eV bei zunehmender Stimulierungstemperatur an. Ebenso findet Peterson [9] im Hochtemperaturpeak von Berylliumoxid (Berylco) kleinere Exoelektronenenergien als im Tieftemperaturpeak. Insgesamt gesehen scheint also das Modell der quasistationären Glühemission zur Beschreibung der TSEE wenig geeignet zu sein.

2.2.2 Emission nach Auger-Rekombination

Zur Klärung der Frage, auf welchem Weg die Exoelektronen Energien E > kT erhalten können, wurde insbesondere von Bohun und Käämbre [23, 24] das folgende Modell zur Diskussion gestellt. Die strahleninduzierten Haftelektronen rekombinieren bei thermischer Stimulierung strahlungslos mit unbesetzten Aktivatorzentren. Die Rekombinationsenergie wird dabei durch Coulomb-Wechselwirkung auf ein Haftelektron in einem benachbarten Zentrum übertragen (Auger-Rekombination). Wenn der Bandabstand größer als die Summe der Ionisierungsenergien und der Austrittsarbeit ist, erhält das Haftelektron bei diesem Vorgang genügend Energie, um die Potentialschwelle an der Oberfläche zu überwinden und als Exoelektron in den Außenraum zu treten. Die kinetische Energie des Exoelektrons kann dann prinzipiell auch größer als kT sein.

Gegen dieses Modell spricht jedoch die folgende Überlegung. Die Dichte der strahleninduzierten Haftelektronen ist unterhalb der Sättigung proportional zur absorbierten Energiedosis D. Demnach gilt einerseits für die Emissionsintensität ε die Proportionalität

$$\varepsilon \sim \omega \cdot D$$
 (12)

wobei ω die Emissionswahrscheinlichkeit ist. Andererseits gilt für den mittleren Abstand r zwischen einem strahleninduzierten Haftelektron und einem Rekombinationszentrum

$$r \sim D^{1/3} \tag{13}$$

Da die Wahrscheinlichkeit für Auger-Rekombination proportional $zu r^{-6}$ ist, müßte nach diesem Modell die Emissionswahrscheinlichkeit ω gemäß der Proportionalität

$$\omega \circ r^{-6} \circ D^2 \tag{14}$$

mit dem Quadrat der Energiedosis zunehmen. Folglich müßte die TSEE-Intensität ε nach Gl.(12) mit der dritten Potenz der Energiedosis zunehmen, was jedoch nicht der Fall ist.

2.2.3 Emission mit Feldunterstützung

Dieses Emissionsmodell wurde von Glaefeke und Mitarbeitern [25,26] speziell zur Erklärung der hohen Exoelektronenenergien nach Elektronenbeschuß entwickelt. Das Modell geht davon aus, daß die Oberfläche von Festkörpern bei Elektronenbeschuß positiv aufgeladen wird, sofern der Koeffizient zur Bildung von Sekundärelektronen größer als 1 ist. Da ein Teil der Sekundärelektronen in Traps lokalisiert wird, entsteht am Ende der Eindringstrecke eine negative Raumladung. Zwischen dieser negativen Raumladung und der positiven Oberflächenladung bildet sich ein starkes elektrisches Feld aus. In diesem Feld erfahren die durch thermische Stimulierung aus den Traps befreiten Haftelektronen eine hohe Beschleunigung in Richtung Oberfläche. Bei hinreichend großer Energieaufnahme können sie den Potentialwall an der Oberfläche überwinden und als Exoelektronen in den Außenraum treten.

Dieses Emissionsmodell kann zwar speziell die bei Elektronenbeschuß auftretenden extrem hohen Exoelektronenenergien erklären, nicht aber den Emissionsmechanismus als solchen. Nach dem Modell müßte die Energie der Exoelektronen nämlich außerordentlich stark von der Einfallsrichtung der anregenden Strahlung abhängen. Insbesondere dürfte bei Einstrahlung von hinten überhaupt keine TSEE auftreten. Dies wird zumindest für die durch γ - oder Röntgenstrahlung angeregte TSEE in der vorliegenden Arbeit widerlegt. Gegen eine allgemeine Gültigkeit dieses Modells spricht im übrigen auch der Befund von Piróg [27], daß die Emission von Exoelektronen ausschließlich aus negativ geladenen Oberflächen erfolgt.

2.3 Entwicklung einer neuen Modelltheorie

2.3.1 Potentialverhältnisse an Festkörperoberflächen

Ausgehend von einer allgemeinen qualitativen Betrachtung der Potentialverhältnisse an der Oberfläche von Festkörpern wird im folgenden eine neue Modelltheorie der TSEE entwickelt, die es ermöglicht, alle erwähnten und bisher noch ungeklärten Eigenschaften der TSEE besser zu verstehen.

Die potentielle Energie eines freien Elektrons ist sowohl im Festkörper als auch im Bereich der Oberfläche und im Außenraum eine stetige Funktion des Ortes. Der in Abb. 1 auf Seite 4 als Stufe dargestellte Potentialsprung an der Oberfläche hat daher qualitativ etwa den in Abb. 2 a dargestellten Verlauf. Mit Hilfe der in dieser Abbildung dargestellten Funktion E(z) kann zunächst ganz allgemein zwischen den folgenden drei Gebieten unterschieden werden:

| a) Kristallvolumen | $E(z) = E_{L}$ |
|--------------------|--|
| b) Außenraum | $E(z) = E_0$ |
| c) Oberflächenzone | E(z) ≠ E _L , E _o |

Streng genommen liegen nach dieser Definition bei einem endlich großen Kristall alle Atome in der Oberflächenzone. Es ist daher sinnvoll, die Oberflächenzone auf den Bereich einzuengen, in dem die Abweichungen der potentiellen Energie E(z) von den Grenzwerten E_L bzw. E_0 relevant sind. Die Breite dieses Bereiches ist vergleichbar mit der Eindringtiefe des elektrischen Feldes einer Punktladung an der Oberfläche. Wenn also z.B. das Potential eines unbesetzten Oberflächentraps den in Abb. 2b dargestellten Verlauf hat, dann erstreckt sich die so definierte Oberflächenzone von der Ebene z_1 bis zur Ebene z_2 .

Addiert man die beiden in Abb. 2a und 2b dargestellten Potentiale, so erhält man die Normalkomponente der potentiellen Energie eines Elektrons im Bereich eines Oberflächentraps (siehe Abb. 3). Der durch diesen Potentialverlauf beschriebene Zustand ist jedoch nicht stabil. Freie Elektronen können sowohl aus dem Leitungsband als auch aus dem Außenraum in die Oberflächenzone diffundieren und die Oberflächentraps teilweise besetzen. Da die Oberflächentraps in einer Ebene liegen, entsteht bei der Trapbesetzung eine negative Flächenladung mit einer resultierenden Feldkomponente senkrecht zur Oberfläche. Durch die Wirkung dieses elektrischen Feldes wird der Diffusionsstrom der freien Elektronen in die Oberflächenzone in zunehmendem Maße gebremst. Auf diese Weise begrenzt sich die Trapbesetzung von selbst. Dieser Effekt ist vergleichbar mit dem Pinch-off der Chemisorption [28].



--- OBERFLÄCHENNORMALE Z

- Abb. 2: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons
 - a) im Bereich der Oberfläche eines idealen Festkörpers
 - b) im Bereich einer positiven Punktladung an der Grenzfläche zwischen zwei Medien mit den Dielektrizitätskonstanten ε_1 und ε_2
 - EL = Potentielle Energie von Leitungselektronen im Grundzustand
 - E_o = Potentielle Energie von freien Elektronen im Außenraum



Abb. 3: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons im Bereich eines unbesetzten Oberflächentraps (alle übrigen Oberflächentraps ebenfalls unbesetzt)



- Abb. 4: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons im Bereich eines unbesetzten Oberflächentraps unter Gleichgewichtsbedingungen (die übrigen Oberflächentraps teilweise besetzt)
 - ΔE_L = Aktivierungsenergie für Elektronenemission aus dem Oberflächentrap ins Leitungsband
 - ΔE_0 = Aktivierungsenergie für Elektronenemission aus dem Oberflächentrap in den Außenraum (siehe Abschn. 2.3.2)

Addiert man das Potential der durch die Trapbesetzung erzeugten negativen Oberflächenladung zu dem in Abb. 3 dargestellten Potential, so erhält man schließlich die potentielle Energie eines Elektrons im Bereich eines Oberflächentraps unter Gleichgewichtsbedingungen (siehe Abb. 4).

Im allgemeinen Fall existieren an der Oberfläche von Festkörpern mehrere Sorten von Traps, die in verschiedenen Ebenen angeordnet sind. Die Dichte der einzelnen Traps nimmt generell nach außen hin stark ab, so daß der Potentialwall an der Oberfläche im wesentlichen von der Besetzung der innersten Traps bestimmt wird. Die Abb. 5 zeigt als Beispiel die Potentialverhältnisse für zwei verschiedene Traptypen im inneren und äußeren Bereich der Oberflächenzone.



- Abb. 5: Normalkomponente der potentiellen Energie eines Elektrons im Bereich der Oberfläche eines Festkörpers mit zwei verschiedenen Oberflächentraps unter Gleichgewichtsbedingungen.
 - E_T = Potentielle Energie eines im Oberflächentrap II lokalisierten Elektrons
 - Ψ = Elektronenaffinität des Oberflächentraps II (siehe Abschn. 2.3.2)

2.3.2 Emission aus Oberflächentraps

Nach den in den Abbildungen 4 und 5 dargestellten Potentialverhältnissen haben Oberflächentraps im allgemeinen eine anisotrope Aktivierungsenergie. Wenn ΔE_L die Aktivierungsenergie für Emission in das LB des Kristalls und ΔE_O die Aktivierungsenergie für Emission in den Außenraum darstellen (siehe Abb. 4 und 5), dann gilt für die Wahrscheinlichkeit $\omega(T)$, daß ein Elektron bei thermischer Stimulierung aus dem Oberflächentrap in den Außenraum emittiert wird

$$\omega(T) = \left\{ \exp\left[\frac{\Delta E_{o} - \Delta E_{L}}{kT}\right] + 1 \right\}^{-1}$$
(15)

So werden z.B. bei einer Stimulierungstemperatur von 500 K und einer Differenz zwischen den Aktivierungsenergien von $\Delta E_o - \Delta E_L =$ 0,1 eV etwa 9 % der aus den Haftstellen befreiten Elektronen in den Außenraum emittiert. Liegt hingegen die Differenz zwischen den Aktivierungsenergien – wie z.B. in dem in Abb. 4 dargestellten Fall – in der Größenordnung der Austrittsarbeit, dann ist die Emissionswahrscheinlichkeit $\omega(T)$ praktisch gleich Null. Umgekehrt verhält es sich bei den Traps vom Typ II im äußeren Bereich der Oberflächenzone (siehe Abb. 5). Hier werden bei thermischer Stimulierung praktisch alle aus den Haftstellen befreiten Elektronen in den Außenraum emittiert ($\omega(T) = 1$).

Von besonderer Bedeutung ist hierbei die Elektronenaffinität Ψ . Diese Größe kennzeichnet das Bestreben von Atomen oder Molekülen, freie Elektronen anzulagern und negative Ionen zu bilden. Zur Quantifizierung von Ψ dient die Energie, die bei der Anlagerung eines zusätzlichen Elektrons frei wird. Wenn also E_T die potentielle Energie des gebundenen Zustandes darstellt (siehe Abb. 5), dann gilt für die Elektronenaffinität der Oberflächentraps II

$$\Psi = E_{O} - E_{T}$$
(16)

 Ψ hängt somit sehr stark von der Trapbesetzung im inneren Bereich der Oberflächenzone (Trap I) ab. Bei hinreichend hoher Trapbeset-

zung kann Ψ - wie z.B. in dem in Abb. 5 dargestellten Fall auch negative Werte annehmen. Die Existenz von TSEE-aktiven Traps mit negativer Elektronenaffinität ist experimentell bereits mehrfach nachgewiesen worden [29,30]. Auf der Basis des hier beschriebenen Emissionsmodells findet dieser Befund also eine einfache physikalische Erklärung.

Das Modell liefert darüberhinaus auch eine Erklärung für die hohen Exoelektronenenergien. Nach Abb. 5 gilt nämlich für die kinetische Energie der nach thermischer Stimulierung in den Außenraum emittierten Elektronen

$$E_{kin} = \Delta E_{o} + E_{T} - E_{o} = \Delta E_{o} - \Psi$$
(17)

Bei kleinen Absolutwerten von Ψ liegt E_{kin} demnach in der gleichen Größenordnung wie die Aktivierungsenergie ΔE_0 . Da die Oberflächentraps bei Zimmertemperatur stabil sind, ist $\Delta E_0 >> kT$. Dies bedeutet, daß auch die kinetische Energie der Exoelektronen sehr viel größer als kT sein muß. Da bei thermischer Stimulierung auch die inneren Traps vom Typ I teilweise entleert werden können, nimmt die Höhe des Potentialwalls und damit auch die kinetische Energie der Exoelektronen mit zunehmender Temperatur ab. Auf diese Weise können also auch die bereits auf Seite 10 zitierten Ergebnisse von Peterson [9] Kortov [10] und Schlenk [11,12] erklärt werden.

Nach den in Abb. 5 dargestellten Potentialverhältnissen können die TSEE-aktiven Traps (Trap II) durch freie Elektronen aus dem Außenraum besetzt werden, wenn deren Anregungsenergie E_A größer als die Energieschwelle

$$E_{s} = \Delta E_{0} - \Psi$$
 (18)

ist. Nach dem Emissionsmodell ist die Energieschwelle E_s betragsmäßig gleich der kinetischen Energie der Exoelektronen. Hieraus ergeben sich Möglichkeiten zur experimentellen Überprüfung des Emissionsmodells. Die Energieschwelle E_s nimmt mit der Haftstellenbesetzung zu. Demnach dauert die Haftstellenbesetzung bei einer gegebenen Anregungsenergie E_A nur so lange an, bis E_s den Wert von E_A erreicht hat. Bei nicht zu großen Werten von E_A kann somit eine Begrenzung der Haftstellenbesetzung auch schon unterhalb der eigentlichen Sättigung auftreten. Hieraus ergeben sich weitere Möglichkeiten zur experimentellen Überprüfung des Modells.

Bei einer Überprüfung des Emissionsmodells in dieser Form muß allerdings sichergestellt werden, daß die elektroneninduzierte TSEE aus den gleichen Traps stammt wie die photoneninduzierte TSEE. Es muß daher eine Glowkurvenanalyse zur Identifizierung der verschiedenen TSEE-aktiven Traps durchgeführt werden. Da die Emissionswahrscheinlichkeit $\omega(T)$ bei allen TSEE-aktiven Traps im äußeren Bereich der Oberflächenzone nach Gl. (15) auf Seite 17 gleich 1 ist, kann die Glowkurvenanalyse auf der Basis von Gl. (10) auf Seite 7 durchgeführt werden. Wenn diese Glowkurvenanalyse konsistente Ergebnisse liefert, so ist dies ein weiterer Hinweis auf die Gültigkeit des Emissionsmodells.

Bevor das Emissionsmodell in dieser Form näher untersucht wird (Abschn. 4.), wird zunächst im folgenden Abschnitt die Meßmethode genauer beschrieben.

MESSMETHODE

3.1. TSEE-Materialien

Bei den bisher bekannten TSEE-Materialien handelt es sich vorwiegend um Halogenide, Sulfate und Borate der Alkali- und Erdalkalimetalle sowie um Erdalkalimetalloxide. Diese Materialien können unter den folgenden Voraussetzungen zur Herstellung von TSEE-Dosimetern verwendet werden:

- Die TSEE-Glowpeaks sollten nicht bei Temperaturen unter 100⁰C auftreten, weil sonst das Fading zu groß ist. Andererseits sollten die Peaks nicht über 500⁰C liegen, da sie sonst zu stark von der Glühemission überlagert werden.
- Das Material sollte bei den zur Messung der TSEE erforderlichen Temperaturen physikalisch und chemisch stabil sein.
- Die TSEE-Empfindlichkeit des Materials sollte reproduzierbar sein.

Von den bislang in dieser Richtung untersuchten Materialien erfüllen gesintertes Berylliumoxid und pulverförmiges Lithiumfluorid diese Forderungen am besten. Diese beiden Materialien werden deshalb auch für die Messungen zur vorliegenden Arbeit verwendet. Das Berylliumoxid liegt in Form von runden Keramikplättchen mit 6 mm Durchmesser und 1,5 mm Dicke (Brush Thermalox 995) vor und kann in dieser Form ohne weitere Bearbeitung für die Messungen verwendet werden. Das Lithiumfluorid liegt in Form von rechteckigen Sinterlingen mit den Abmessungen 3 mm x 3 mm x 1 mm (Harshaw TLD-600) und in Pulverform (Merck Suprapur, mindestens 99,98 % LiF, 10-40 µm Korngröße) vor.

Für die Messungen zur experimentellen Überprüfung des Emissionsmodells (Abschn. 4) werden nur die keramischen BeO-Plättchen und die LiF-Sinterlinge herangezogen. Das LiF-Pulver wird erst bei den in Abschn. 5 beschriebenen dosimetrischen Untersuchungen eingesetzt.

Vor den Messungen werden die LiF-Sinterlinge (wie in der Thermolumineszenzdosimetrie) jeweils einer Wärmebehandlung von zunächst 1 h bei 400[°]C und danach 10 min bei 100[°]C unterzogen. Die BeO-Plättchen werden einer vierstündigen Wärmevorbehandlung bei 1400[°]C unterworfen. Crase [31] hat bei Messungen am gleichen Material gezeigt, daß die Empfindlichkeit der Proben durch eine solche Wärmevorbehandlung auf einem Höchstwert stabilisiert wird.

3.2 TSEE-Anregung

3.2.1 Photonen

Zur Anregung der TSEE mit Photonen stehen zwei Röntgenröhren sowie verschiedene ¹³⁷Cs- und ⁶⁰Co-Quellen zur Verfügung. Mit den Röntgenröhren können bei geeigneter Filterung der Bremsstrahlung homogene Spektren mit einer Halbwertsbreite von etwa 25 % erzeugt werden. Die effektiven Energien dieser Strahlungsqualitäten wurden über die Halbwertsdicke von geeigneten Materialien bestimmt. Sie sind zusammen mit den jeweiligen Röhrenspannungen und Filterkombinationen in der Tab. 1 aufgeführt.

| Röhre | Röhren- Köhre spannung [mm] | | Effektive Energie [keV] |
|-------|--------------------------------|--------------------------|-------------------------------|
| 1 | 27,5 | 2,5 A1 | 19 |
| 1 | 30 | 2,0 A1 + 0,1 Cu | 23 |
| 1 | 40 | 2,0 A1 + 0,35 Cu | 33 |
| 1 | 50 | 2,0 A1 + 0,8 Cu | 45 |
| 2 | 80 | 2,0 A1 + 0,7 Cu | 55 |
| 2 | 100 | 2,0 A1 + 2,0 Cu | 71 |
| 2 | 120 | 2,0 A1 + 3,5 Cu | 87 |
| 2 | 150 | 2,0 A1 + 7,0 Cu | 110 |
| 2 | 200 | 2,0 A1 + 5,0 Cu + 0,9 Pb | 150 |
| 2 | 250 | 2,0 A1 + 5,0 Cu + 2,0 Pb | 200 |
| 2 | 300 | 2,0 A1 + 5,0 Cu + 3,5 Pb | 240 |

Tab. 1: Effektive Energie der Röntgenstrahlung bei verschiedenen Röhrenspannungen und Filterkombinationen (zuzüglich 2 mm Al Eigenfilterung)

Mit den beiden Röntgenröhren läßt sich demnach der Energiebereich von 19 keV bis 240 keV abdecken. Dieser Energiebereich ist in der Photonendosimetrie von besonderer Bedeutung, da hier die Massenenergieabsorptionskoeffizienten eine außerordentlich starke Energie- und Materialabhängigkeit aufweisen (vgl. Abb. 27, Seite 63).

Zur Untersuchung der dosimetrischen Eigenschaften im Bereich des nur schwach materialabhängigen Compton-Effekts werden die γ -Quellen herangezogen. ¹³⁷Cs emittiert eine γ -Strahlung mit einer Energie von 662 keV, während ⁶⁰Co zwei verschiedene γ -Linien bei 1173 keV und 1332 keV abstrahlt. Da sich die Massenenergieabsorptionskoeffizienten aller hier in Betracht kommenden Materialien im Bereich von 1173 bis 1332 keV nicht nennenswert ändern (vgl. Abb. 27), kann für die γ -Strahlung von ⁶⁰Co in diesem Zusammenhang eine effektive Energie von 1250 keV angenommen werden.

3.2.2 Elektronen

Zur experimentellen Überprüfung des in Abschnitt 2.3 entwickelten Emissionsmodells soll die TSEE durch Elektronen mit extrem niedriger Energie angeregt werden. Damit die elektroneninduzierte TSEE mit der photoneninduzierten TSEE verglichen werden kann, muß die Anregung mit Elektronen unter den gleichen äußeren Bedingungen - also an Luft unter Normaldruck - erfolgen. Eine Möglichkeit, diese Anregung zu realisieren, besteht darin, daß man das Dosimeter in das elektrische Feld eines Plattenkondensators einbringt (siehe Abb. 6). Beim Anlegen der Spannung +U an die positive Elektrode werden die in der Luft stets vorhandenen freien Elektronen in Richtung Dosimeter beschleunigt. Die mittlere Energieaufnahme der freien Elektronen im elektrischen Feld ist z.B. bei Rossi und Staub [32] für verschiedene Gasarten in Abhängigkeit von der Feldstärke und dem Gasdruck angegeben. Die Abb. 7 zeigt den nach diesen Angaben berechneten Zusammenhang zwischen der mittleren Anregungsenergie der freien Elektronen und der Feldstärke in Stickstoff bei Normaldruck. Dieser Zusammenhang kann auch in guter Näherung bei Luft (78 Volumenprozent N_2) unter Normaldruck zugrundegelegt werden. Demnach nimmt die mittlere Elektronenenergie zunächst sehr rasch bis auf etwa 1 eV bei einer Feldstärke von 1 kV/cm zu. Diesem steilen Anstieg folgt ein flacher werdender Anstieg bis auf etwa 2 eV bei 10 kV/cm. Höhere Feldstärken werden bei

den Messungen zur vorliegenden Arbeit zur Vermeidung von elektrischen Durchschlägen nicht angelegt.



Abb. 6: Plattenkondensator zur Anregung der Dosimeter mit niederenergetischen Elektronen (Maßstab etwa 1:1)



Abb. 7: Mittlere Anregungsenergie von freien Elektronen in N_2 bei Normaldruck in Abhängigkeit von der Feldstärke (nach [32])

3.3 TSEE-Auswertung

Für die Messungen zur vorliegenden Arbeit werden zwei TSEE-Reader der Firmen ATOMIKA - Technische Physik GmbH München (Reader I) und Christl-Klemt-Singer München (Reader II) verwendet. Beide Reader bestehen im wesentlichen aus einer heizbaren Dosimeterauflage mit einem darüber angeordneten offenen Durchflußzähler sowie aus peripheren Einrichtungen zur Temperatursteuerung und Impulsregistrierung. Sie unterscheiden sich prinzipiell nur in der Art der Dosimeteraufheizung und der Temperaturregulierung. Im Zählkopf des ATOMIKA-Readers (siehe Abb. 8) liegt das Dosimeter auf einer Quarzplatte, die von unten durch ein Heizelement aus Widerstandsmaterial beheizt wird. Die Temperaturmessung erfolgt durch ein Thermoelement unmittelbar am Heizelement.



Abb. 8: Aufbau des Zählkopfes des ATOMIKA-Readers (Reader I)

Die Leistung des Heizelements kann mit Hilfe einer Temperatursteuereinheit (siehe Abb. 9) so reguliert werden, daß die Temperatur am Thermoelement zeitlinear ansteigt oder aber einen bestimmten Wert beibehält. Die Anstiegsgeschwindigkeit ist im Bereich von 0,2 K/s bis 10 K/s stufenlos einstellbar. Die Endtemperatur von maximal 600^OC kann bis zu 100 s lang gehalten werden. Damit sich der Zählraum während der Aufheizung nicht zu stark erwärmt, wird der die Heizplatte umgebende Teil des Heizkopfes durch einen Wasserkreislauf gekühlt. Der Heizkopf wird mit Hilfe eines Hebestempels von unten in den Zählraum eingeführt. Bei geschlossenem Zähler beträgt der Abstand zwischen der Dosimeterauflage und dem Zähldraht 11 mm. Der Zähler wird im Durchfluß mit einem Gemisch von 90 % Argon und 10 % Methan betrieben.



Abb. 9: Blockschaltbild des ATOMIKA-Readers (Reader I) mit peripheren Einrichtungen zur Impulsregistrierung Die Zählerimpulse werden von einem unmittelbar über dem Zähler angeordneten Diskriminator-Verstärker (ATOMIKA) zu 5 V-Normimpulsen aufgearbeitet und einem Scaler-Timer (Berthold BF 2270-1) sowie einem Ratemeter (Wenzel-Elektronik N-R-107) zugeführt. Zur Aufzeichnung der Glowkurven wird die Temperatur T des Thermoelements und die entsprechende Zählrate Z(T) auf den X- bzw. den Y-Eingang eines Hewlett-Packard 135 M X-Y-Recorders gegeben. Allerdings stimmt die Temperatur des Thermoelements nicht mit der Temperatur der Emissionsschicht des Dosimeters überein. Letztere kann bei hohen Aufheizgeschwindigkeiten und schlechtem Wärmekontakt zwischen Dosimeter und Quarzplatte erheblich kleiner sein. Da der Wärmekontakt darüber hinaus auch nicht reproduzierbar ist, kann hier keine eindeutige Temperaturzuordnung der Glowkurven gewährleistet werden. Der ATOMIKA-Reader ist daher nur für rein dosimetrische Messungen geeignet, bei denen es lediglich auf die Glowkurvenfläche, nicht aber auf die Temperaturlage der Glowpeaks ankommt.

Die Schwierigkeiten der Temperaturzuordnung werden bei dem TSEE-Reader der Fa. Christl-Klemt-Singer dadurch behoben, daß die Oberflächentemperatur des Dosimeters durch ein aufliegendes Thermoelement direkt gemessen wird. Dieses Thermoelement senkt sich beim Verschliessen des Zählers auf das Dosimeter und sorgt durch leichten Druck auch für einen besseren Wärmekontakt mit der Heizplatte aus Platin. Die Heizplatte wird von unten durch eine Infrarotlampe aufgeheizt, wobei die Temperatur an der Dosimeteroberfläche als Regelgröße dient. Zur Vermeidung von Regelschwingungen wird von einem zweiten Thermoelement zusätzlich noch die Temperatur an der Unterseite der Platinplatte gemessen und in den Regelkreis eingespeist. Die Aufheizgeschwindigkeit kann im Bereich von etwa 0,02 K/s bis 10 K/s stufenlos variiert werden. Die maximale Endtemperatur liggt bei 600 ^OC und kann bis zu 1000 s lang gehalten werden. Der Reader von Christl-Klemt-Singer verfügt wie der von ATOMIKA über einen integrierten Diskriminator-Verstärker. Darüber hinaus hat er jedoch auch eine interne Hoch-

spannungsversorgung und einen internen Kühlwasserkreislauf. Die Impulsregelung und Glowkurvenaufzeichnung erfolgt mit der gleichen peripheren Instrumentierung wie beim ATOMIKA-Reader (siehe Abb. 9).





- Abb. 10: Zählercharakteristiken der beiden Reader für TSEE (Glowpeak A von BeO) und γ-Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle)
- Abb. 11: Glowpeak A von BeO-Dosimetern bei verschiedenen Zählerspannungen U

Die Zähler von beiden Readern arbeiten im Proportionalbereich und haben etwa die gleichen Zählcharakteristiken. Für γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle an der Zähleraußenwand ergibt sich die in Abb. 10 oben dargestellte Abhängigkeit der Zählrate von der Zählerspannung. Der Anstiegsbereich erstreckt sich bis etwa 1,8 kV. Das Plateau ist ungefähr 200 V lang und hat eine Steigung von 5 % pro 100 V. Zum Vergleich ist im unteren Teil der Abb. 15 die Gesamtzahl der TSEE-Impulse des Glowpeaks A von BeO-Dosimetern (vgl. Abschn. 4.1) in Abhängigkeit von der Zählerspannung aufgetragen. Der Anstieg der Zählcharakteristik ist infolge der sehr viel kleineren Energie der Exoelektronen wesentlich steiler als bei y-Strahlung und erstreckt sich bis 1,95 kV. Zwischen 1,95 kV und 2,05 kV ist ein Plateau zu erkennen, das etwa die gleiche Steigung wie bei γ -Strahlung hat. Oberhalb von 2,05 kV wird die Emission offenbar gestört. Die Abb. 11 zeigt einige der entsprechenden Glowkurven. Bei Zählerspannungen U < 2 kV haben die Kurven einen nahezu symmetrischen und stetigen Verlauf. Bei U = 2,1 kV dagegen ist die Glowkurve außerordentlich unstetig. Bei dieser Spannung ist die Gasverstärkung im Zähler offenbar so groß, daß die positive Raumladung nicht mehr schnell genug abgesogen werden kann. Ein Teil der positiven Ladungen setzt sich auf die negativ geladene Dosimeteroberfläche und rekombiniert dort mit den aus den Haftstellen befreiten Exoelektronen. Dadurch bricht die TSEE-Zählrate zusammen. Erst wenn alle positiven Ladungen durch die Oberflächenrekombination beseitigt sind, schnellt die TSEE-Zählrate wieder auf den ursprünglichen Wert zurück. Dadurch bildet sich erneut eine starke positive Raumladung und die TSEE-Zählrate bricht wieder zusammen. Diese Zählratensprünge werden durch das Ratemeter bis zu einem gewissen Grad ausgeglichen, so daß sich dann die in Abb. 11 dargestellte Glowkurve ergibt. Zur Vermeidung solcher Unstetigkeiten wird bei allen weiteren Messung eine Spannung von 2 kV angelegt.
4. EXPERIMENTELLE ÜBERRÜFUNG DES EMISSIONSMODELLS

Die experimentelle Überprüfung des Emissionsmodells umfaßt im wesentlichen zwei Schritte. Im ersten Schritt soll sichergestellt werden, daß bei Anregung mit niederenergetischen Elektronen dieselben TSEE-Traps besetzt werden wie bei Photoneneinwirkung. Im zweiten Schritt sollen dann die Eigenschaften der TSEE auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells untersucht werden. Insbesondere soll dabei die Abhängigkeit der elektroneninduzierten TSEE von der Anregungsenergie näher betrachtet werden.

4.1 Messungen

Vorbereitende Messungen haben gezeigt, daß sich die elektroneninduzierte TSEE bei den BeO-Proben wesentlich besser reproduzieren läßt als bei den LiF-Proben. Aus diesem Grund wurden die Messungen zu diesem Abschnitt vornehmlich an den BeO-Proben durchgeführt.

Die TSEE der LiF-Proben wird zunächst nur einer allgemeinen qualitativen Betrachtung unterzogen. Die Abb. 12 zeigt die Glowkurve von TLD-600 nach Anregung mit niederenergetischen Elektronen bei einer mittleren Anregungsenergie von etwa 1,5 eV (Kurve e) im Vergleich zu den Glowkurven des gleichen Materials nach Anregung mit α - bzw. γ -Strahlung (Kurven α und γ). Die α - und γ -induzierten Glowkurven gehen auf Messungen von Becker, Cheka und Oberhofer [33] zurück, während die elektroneninduzierte Glowkurve in eigenen Messungen gewonnen wurde. Alle drei Kurven zeigen ein stark ausgeprägtes Maximum bei etwa 320⁰C. Aus der Form der elektroneninduzierten Kurve ist zu schließen, daß es sich bei diesem Hauptmaximum um einen Doppelpeak handet. Dadurch erklärt sich die Tatsache, daß sowohl in der α - als auch in der γ -induzierten Kurve die Anstiegsflanke des Hauptpeaks steiler als die Abstiegsflanke ist. Neben dem Hauptpeak haben alle drei Kurven noch einen weiteren Peak bei etwa 200⁰C. Die γ -induzierte Kurve hat darüberhinaus noch (wie die α -induzierte Kurve) einen Peak bei etwa 125⁰C und (wie die elektroneninduzierte Kurve) einen Peak bei etwa 180⁰C. Zusammenfassend kann man fest-

29



Abb. 12: Glowkurven von LiF-Dosimetern (TLD-600) nach Anregung mit α - bzw. γ -Strahlung (Kurven α und γ nach [33])und nach Anregung mit niederenergetischen Elektronen (Kurve e)

stellen, daß alle elektroneninduzierten Glowpeaks auch in der γ -induzierten Kurve auftreten. Hier ist also auch ohne eine genauere Analyse der Glowkurven eine Identifizierung der elektroneninduzierten TSEE mit der photoneninduzierten TSEE möglich.

Bei den BeO-Proben ist dies allerdings nicht der Fall. Hier muß eine eingehende Glowkurvenanalyse zur Bestimmung der Haftstellenparameter durchgeführt werden. Aus diesem Grund wird die TSEE der BeO-Proben zunächst bei verschiedenen Aufheizgeschwindugkeiten etwas näher untersucht. Die Abb. 13 zeigt die Glowkurven von BeO nach Anregung mit Photonenstrahlung (¹³⁷Cs-Quelle) für die beiden Aufheizgeschwindigkeiten q = 0.13 K/s und q = 2.5 K/s. Bei q =0,13 K/s hat die Glowkurve ein ausgeprägtes Maximum (A) bei 238⁰C und ein schwächeres Maximum (B) bei 354⁰C. Dazwischen ist bei etwa 305⁰C noch ein sehr schwaches Maximum zu vermuten. Dieses Maximum ist allerdings bei höheren Aufheizgeschwindigkeiten kaum noch feststellbar und wird bei den folgenden Betrachtungen nicht berücksichtigt. Bei der Aufheizgeschwindigkeit q = 2,5 K/s liegt das Maximum A bei 282⁰C und das Maximum B bei 407⁰C. Die Verschiebung der Maxima um 42 K bzw. 53 K entspricht dem in Abschnitt 4.2.1 behandelten Randall-Wilkins-Shift.



Abb. 13: Glowkurven von BeO-Dosimetern nach Anregung mit γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle) für die beiden Aufheizgeschwindigkeiten q = 0,13 K/s und q = 2,5 K/s (Reader II)

31

In der Literatur werden die Glowpeaks von BeO in Anlehnung an die Arbeiten von Holzapfel [19] als O-Maximum, V-Maximum, V'-Maximum usw. bezeichnet. Da jedoch aufgrund der Temperaturlage der Glowmaxima noch keine Identifizierung der Glowpeaks möglich ist, werden zunächst die Bezeichnungen A und B beibehalten.



Wie aus der Abb. 13 weiter hervorgeht, nimmt die relative Intensität des Glowpeaks B mit der Aufheizgeschwindigkeit zu. Dieser bisher noch nicht beobachtete Zusammenhang wurde mit Hilfe von frischen Dosimetern, deren Vorbehandlung etwa um einen Monat zurücklag, genauer untersucht. Dabei ergab sich der in Abb. 14 dargestellte Zusammenhang zwischen dem Peakhöhenverhältnis B/A und der Aufheizgeschwindigkeit q, der in guter Näherung durch die Gleichung

$$B/A = 3,9 \cdot \sqrt{q} \tag{19}$$

beschrieben werden kann. Hierbei sind B und A die Amplituden der beiden Glowpeaks und q die Aufheizgeschwindigkeit in K/s.

Bei wiederholter Bestrahlung und Auswertung von ein und demselben Dosimeter nimmt das Peakhöhenverhältnis B/A in nicht reproduzierbarer Weise ab. Nach etwa der fünften Auswertung ist der Glowpeak B auch bei sehr hohen Aufheizgeschwindigkeiten kaum noch zu beobachten (siehe Abb. 15). Erst nach einer Lagerung von mindestens zwei Wochen unter Laborbedingungen tritt der Glowpeak B wieder in seiner ursprünglichen Höhe auf.



Abb. 15: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach fünfmaliger Anregung mit γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle) und nachfolgender Auswertung (g = 5 K/s; Reader II)

Der Glowpeak A läßt sich dagegen bei wiederholter Anregung und Auswertung unter gleichen Bedingungen sehr gut reproduzieren. Dieser Peak eignet sich daher besonders gut für vergleichende Betrachtungen der photonen- und elektroneninduzierten TSEE. Für die vergleichenden Untersuchungen wird eine feste Aufheizgeschwindigkeit von 1 K/s gewählt. Die Abb. 16 zeigt den Glowpeak A (durchgezogene Kurve) in halblogarithmischer Darstellung. Die Abbildung zeigt außerdem auch noch berechnete Einzelkurven, die sich allerdings erst aus der Glowkurvenanalyse in Abschnitt 4.2.3 ergeben. Zunächst ist noch nicht ohne weiteres erkennbar, daß es sich bei dem Glowpeak A um einen Mehrfachpeak handelt. Die Form der Glowkurve hängt bei Anregung mit Photonenstrahlung im Energiebereich von 19 keV bis 1250 keV nicht von der Photonenenergie ab. Auch kann keine Abhängigkeit von der Energiedosis festgestellt werden.



Abb. 16: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Photonen (q = 1 K/s; Reader II)



Abb. 17: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1.29 eV (q = 1 K/s; Reader II)



Abb. 18: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsmenge 1.42 eV (q = 1 K/s; Reader II)



Abb. 19: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1.49 eV (q = 1 K/s; Reader II)

Grundsätzlich anders verhält es sich bei der elektroneninduzierten TSEE. Die Abbildungen 17 bis 19 zeigen als Beispiele die Glowkurven von BeO im Temperaturbereich des Glowpeaks A nach Elektronenanregung bei den Feldstärken 2 kV/cm, 2,67 kV/cm und 3,33 kV/cm. Bei Zugrundelegung des in Abb. 7 auf Seite 23 dargestellten Zusammenhangs entsprechen diesen Feldstärken mittlere Anregungsenergien von 1.29 eV, 1.42 eV und 1.49 eV. Wie aus den Abbildungen 17 bis 19 hervorgeht, hat die elektroneninduzierte Glowkurve im Bereich des Glowmaximums A bis zu fünf einzelne Glowpeaks. Die beiden Peaks A_{I} und A_{II} bei 110^OC bzw. 160^OC werden noch gut aufgelöst, während die drei Hauptpeaks A_{III} , A_{IV} und A_{V} erst mit Hilfe der Glowkurvenanalyse in Abschn. 4.2.3 voneinander separiert werden können.

Die Gesamtintensität der elektroneninduzierten TSEE im Bereich des Glowmaximums A hängt sowohl von der Anregungsenergie E_A als auch von der Anregungszeit t ab. Die Abb. 20 zeigt als Beispiel die Abhängigkeit der TSEE-Intensität ε von der Anregungszeit t für die beiden Anregungsenergien $E_A = 1,25$ eV und $E_A = 1,46$ eV. Diese Abhängigkeit kann durch die Gleichung

$$\varepsilon(E_A, t) = \varepsilon_0(E_A) \cdot \left[1 - \exp(\frac{t}{\tau})\right]$$
 (20)

beschrieben werden. Dabei ist τ eine Zeitkonstante, für die sich als arithmetrisches Mittel aus allen Messungen der Wert 2.7 \pm 0,6 s ergibt. Die mit diesem Wert nach Gl. (20) berechnete Zeitabhängigkeit ist in Abb. 20 für die beiden Anregungsenergien jeweils als durchgezogene Linie dargestellt. Die Grenzwerte $\varepsilon_0(E_A)$, die in Abb. 20 durch die gestrichelten Linien markiert werden, sind in Abb. 21 über der mittleren Anregungsenergie aufgetragen worden. Wie aus dieser Abbildung hervorgeht, nimmt ε_0 oberhalb von der Schwellenenergie $E_s = 1.24$ eV zunächst außerordentlich steil und danach immer flacher werdend mit der Anregungsenergie E_A zu. Als wesentliche Ergebnisse dieser Messungen sind die folgenden Punkte herauszustellen:

- Bei Anregungsenergien $\rm E_A < 1.25~eV$ kann keine elektroneninduzierte TSEE nachgewießen werden.
- Bei Anregungsenergien E $_{\rm A}$ > 1.25 eV strebt die elektroneninduzierte TSEE ϵ mit der Anregungszeit t einem Sättigungswert $\epsilon_{\rm O}$ zu.
- Der Sättigungswert ε_0 hängt von der Anregungsenergie E $_{A}$ ab.



Abb. 20: TSEE-Intensität im Bereich des Glowmaximums A von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1.25 eV bzw. 1.46 eV in Abhängigkeit von der Anregungszeit.



Abb. 21: Maximale Intensität der elektroneninduzierten TSEE im Bereich des Glowmaximums A von BeO in Abhängigkeit von der mittleren Anregungsenergie

Bevor die Meßergebnisse auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells interpretiert werden (siehe Abschn. 4.3), wird zunächst im folgenden Abschnitt eine Glowkurvenanalyse zur Identifizierung der an der TSEE beteiligten Haftstellen durchgeführt.

4.2 Glowkurvenanalyse

4.2.1 Randall-Wilkins-Shift

Als Ausgangspunkt für die Glowkurvenanalyse dient die bereits in Abschn. 2.1 entwickelte Gleichung für die Temperaturabhängigkeit der TSEE-Intensität € bei zeitlinearer Temperaturerhöhung (Gl. (10) auf Seite 7). Diese Gleichung hat in ausführlicher Schreibweise die Form

$$\varepsilon(T) = \frac{1}{q} \cdot H \cdot K_{o} \cdot \exp\left\{-\frac{\Delta E_{o}}{kT} - \frac{K_{o}}{q} \cdot \int_{0}^{T} \exp\left[-\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right] dT\right\}$$
(21)

q = Aufheizgeschwindigkeit

H = Fläche unter der Glowkurve

 $K_0 = Frequenzfaktor$

 ΔE_{c} = Aktivierungsenergie für Exoelektronenemission

Aufgrund dieser Gleichung gilt für die Temperaturlage des Glowmaximums (T_m) die implizite Beziehung

$$\ln\left[\frac{q}{T_{m}^{2}}\right] = -\frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}} + \ln\left[\frac{k \cdot K_{o}}{\Delta E_{o}}\right]$$
(22)

Wie aus dieser Beziehung hervorgeht, hängt T_m bei gegebenen Haftstellenparametern von der Aufheizgeschwindigkeit q ab. Und zwar verschiebt sich T_m mit zunehmender Aufheizgeschwindigkeit nach höheren Temperaturen. Trägt man $1/T_m^2$ halblogarithmisch über $1/T_m$ auf, so ergibt sich aufgrund von Gl.(22) eine Gerade, aus deren Steigung und Achsenabschnitt die beiden Parameter ΔE_o und K_o bestimmt werden können. Voraussetzung ist dabei allerdings, daß es sich bei der Glowkurve um einen Singlepeak handelt und daß die Emissionswahrscheinlichkeit $\omega(T)$ im gesamten Peakbereich konstant ist.

Diese bereits von Randall und Wilkins [34] vorgeschlagene Methode der Glowkurvenanalyse wird auf die beiden photoneninduzierten Glowpeaks A und B von BeO (siehe Abb. 13 auf Seite 31) angewandt. Zu diesem Zweck werden jeweils 10 bei verschiedenen Aufheizgeschwindigkeiten zwischen 0.024 K/s und 2.0 K/s aufgenommene Glowkurven ausgewertet. Dabei zeigt sich zunächst, daß die Temperaturlage der Glowmaxima bei gegebener Aufheizgeschwindigkeit um etwa 5 K streut. Zusammen mit einem Eichfehler von ebenfalls etwa 5 K (Angabe des Herstellers vom Reader II) ergibt sich daraus ein Gesamtfehler von höchstens 10 K in der Temperaturzuordnung der einzelnen Glowkurven. Bei Zugrundelegung dieses Gesamtfehlers ergibt sich allerdings für den Glowpeak A kein linearer Zusammenhang zwischen $ln(q/T_m^2)$ und l/T_m . Hier ist also entweder die Emissionswahrscheinlichkeit nicht konstant oder aber es handelt sich um einen Mehrfachpeak. Bei dem Glowpeak B handelt es sich dagegen offenbar um einen Singlepeak mit



Abb. 22: Bestimmung der Haftstellenparameter für den Glowpeak B von BeO aus dem Randall-Wilkins-Shift

konstanter Emissionswahrscheinlichkeit. Wie die Abb. 22 zeigt, besteht hier ein linearer Zusammenhang zwischen $ln(q/T_m^2)$ und $1/T_m$. Aus den Meßwerten erhält man mit Hilfe eines Least-Square-Fits die Parameter

$$\Delta E_{0} = 2,07 \pm 0,61 \text{ eV}$$

$$\ln(K_{0}) = 33,26 \pm 2,62$$

$$(K_{0} = 2,8 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1})$$
(Glowpeak B)

Die Fehlerbreiten sind dabei nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz bei Zugrundelegung eines Gesamtfehlers von 10 K in der Temperaturzuordnung ermittelt worden. Da bei einem Fehler von nahezu 30 % in der Aktivierungsenergie noch keine Identifizierung der Haftzentren möglich ist, werden in den beiden folgenden Abschnitten zwei neue Methoden der Glowkurvenanalyse entwickelt, die bei gleichem Meßfehler wesentlich genauere Werte für ΔE_0 liefern.

4.2.2 Iterationsmethode

Diese Methode basiert auf einer neuentwickelten Näherungslösung für das Integral in der Glowkurvengleichung (21) auf Seite 41. Durch Substitution und fortgesetzte partielle Integration erhält man

$$\int_{0}^{T} \exp\left[-\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right] dT \simeq T \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right] \cdot \left\{\sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n} \left[\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right]^{-n}\right\} \cdot \left\{-\sum_{n=0}^{\infty} (-1)^{n} \left[\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right]^{-n}\right\}$$
$$= \frac{\frac{\Delta E_{o}}{k} \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right]}{\left[1 + \frac{\Delta E_{o}}{kT}\right]^{2}}$$
(23)

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sind nur solche Haftniveaus von Interesse, die bei Zimmertemperatur noch weitgehend stabil sind $(\Delta E_0 > 20 \text{ kT})$. Bei diesen Haftniveaus weicht der durch Gl. (23) gegebene Näherungswert um höchstens 0,2 % vom exakten Wert des Integrals ab. Verglichen mit der Meßgenauigkeit ist dieser Fehler vernachlässigbar klein, so daß bei den folgenden Betrachtungen die Näherung als exakte Lösung des Integrals angesehen werden kann. Setzt man die Näherung zusammen mit Gl. (22) in Gl. (21) ein, so ergibt sich speziell für die TSEE-Intensität im Glowmaximum

$$\varepsilon(T_{m}) = H \cdot \left[\frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}^{2}}\right] \cdot \exp\left\{-\left[\frac{\frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}}}{\frac{\Delta E_{o}}{1 + \frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}}}\right]^{2}\right\}$$
(24)

Hieraus erhält man durch Logarithmieren und Umstellen die implizite Beziehung

$$\ln\left[\frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}^{2}}\right] = \ln\left[\frac{\varepsilon(T_{m})}{H}\right] + \left[\frac{\frac{\Delta E_{o}}{kT_{m}}}{1 + \frac{E_{o}}{kT_{m}}}\right]^{2}$$
(25)

mit deren Hilfe man die Aktivierungsenergie iterativ aus der Temperaturlage des Glowmaximums T_m , der maximalen TSEE-Intensität $\varepsilon(T_m)$ und der Peakfläche H bestimmen kann. Man beginnt die Iteration, indem man den zweiten Term auf der rechten Seite von Gl. (25) gleich 1 setzt. Auf diese Weise erhält man bereits einen sehr guten Näherungswert für ΔE_0 , den man auf der rechten Seite einsetzt usw. Die Iteration konvergiert sehr schnell, so daß man im allgemeinen bereits nach drei Schritten abbrechen kann.

So ergibt sich z.B. für den Glowpeak B bei der Aufheizgeschwindigkeit q = 0,07 K/s mit den Werten T_m = 616 K und $\epsilon(T_m)/H$ = 0,0227 als Anfangswert $\Delta E_0 = 2,087 \text{ eV}$ als 1. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,977 \text{ eV}$ als 2. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,971 \text{ eV}$ als 3. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,971 \text{ eV}$

Für die vergleichsweise sehr hohe Aufheizgeschwindigkeit q = 2 K/s erhält man mit den Werten T_m = 683 K und $\epsilon(T_m)/H$ = 0,0191

als Anfangswert $\Delta E_0 = 2,018 \text{ eV}$ als 1. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,918 \text{ eV}$ als 2. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,913 \text{ eV}$ als 3. Iterationswert $\Delta E_0 = 1,913 \text{ eV}$

Die Auswertung aller anderen Glowkurven mit Aufheizgeschwindigkeiten zwischen 0,07 K/s und 2 K/s liefert innerhalb einer Schwankungsbreite von 5 % die gleichen Ergebnisse. Geht man davon aus, daß die Peakfläche H und die maximale Glowintensität $\varepsilon(T_m)$ mit einem Fehler von jeweils 1 % bestimmt werden können und daß der mittlere Fehler in T_m höchstens 10 K beträgt, dann ergibt sich nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ein Gesamtfehler von etwa 6 % in ΔE_0 . Dieser Fehler ist mit der empirisch ermittelten Schwankungsbreite der Ergebnisse konsistent. Zur genaueren Analyse des Glowpeaks B werden für jede Aufheizgeschwindigkeit jeweils 10 Glowkurven ausgewertet. Durch die Mittelwertbildung reduziert sich der Fehler in ΔE_0 auf etwa 2 %. Auf diese Weise erhält man schließlich

$$\Delta E_{0} = 1,95 \pm 0,04 \text{ eV} \\ \ln(K_{0}) = 30,80 \pm 1,19 \\ (K_{0} \approx 2,38 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}) \end{cases}$$
 (Glowpeak B)

Hier ist also der Gesamtfehler in der Aktivierungsenergie etwa um den Faktor 15 kleiner als bei der Methode nach Randall und Wilkins.

45

Für das Glowmaximum A liefert jedoch auch die Iterationsmethode keine konsistenten Ergebnisse. Hier liegt also offenbar sowohl in der photoneninduzierten als auch in der elektroneninduzierten Glowkurve ein Mehrfachpeak vor. Aus diesem Grund wird im folgenden Abschnitt noch eine neue Methode der differentiellen Glowkurvenanalyse entwickelt, die unter bestimmten Voraussetzungen auch auf Mehrfachpeaks angewandt werden kann.

4.2.3 Differentielle Methode

Nach Gl. (21) gilt für die beiden ersten Ableitungen der logarithmischen Emissionsintensität

$$\frac{d}{dT}\left[\ln \epsilon(T)\right] = \frac{\Delta E_{o}}{kT^{2}} - \frac{K_{o}}{q} \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E_{o}}{kT}\right]$$
(26)

und

$$\frac{d^2}{dT^2} \left[\ln \epsilon(T) \right] = -\frac{2 \cdot \Delta E_0}{kT^3} - \frac{\Delta E_0}{kT^2} \cdot \frac{K_0}{q} \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E_0}{kT}\right]$$
(27)

Nach Eliminierung des Exponentialterms erhält man aus diesen beiden Beziehungen eine quadratische Bestimmungsgleichung für die Aktivierungsenergie ΔE_{o} mit der Lösung

$$\Delta E_{0} = kT \left\{ \frac{T}{2} \cdot \frac{d}{dT} \left[\ln \varepsilon(T) \right] - 1 + \sqrt{\left\{ \frac{T}{2} \cdot \frac{d}{dT} \left[\ln \varepsilon(T) \right] - 1 \right\}^{2} - T^{2} \cdot \frac{d^{2}}{dT^{2}} \left[\ln \varepsilon(T) \right]} \right\}$$
(28)

Diese Gleichung gilt allerdings nur für Singlepeaks. Man kann jedoch mit Hilfe dieser Beziehung eine Funktion

$$f(T) = kT \left\{ \frac{T}{2} \cdot \frac{d}{dT} \left[\ln \varepsilon(T) \right] - 1 + \sqrt{\left\{ \frac{T}{2} \cdot \frac{d}{dT} \left[\ln \varepsilon(T) \right] - 1 \right\}^2 - T^2 \cdot \frac{d^2}{dT^2} \left[\ln \varepsilon(T) \right]} \right\}$$
(29)

definieren, die bei Überlagerungen von mehreren (i) Glowpeaks entsprechend der Asymptotik

$$f(T) \rightarrow \Delta E_{0_{i}}$$
 für $T \rightarrow T_{i}$ (30)

gegen die Aktivierungsenergie des i-ten Glowpeaks strebt. Dabei ist T_i die Temperatur, bei der der prozentuale Anteil des i-ten Glowpeaks an der Gesamtkurve am größten ist.

In Analogie dazu kann man mit Hilfe von Gl. (26) auch eine Funktion

$$g(T) = q \cdot exp\left[\frac{f(T)}{kT}\right] \cdot \left\{\frac{f(T)}{kT^2} - \frac{d}{dT}\left[\ln \epsilon(T)\right]\right\}$$
(31)

definieren, die gemäßt der Asymptotik

$$g(T) \rightarrow K_{0i} \quad \text{für } T \rightarrow T_{i}$$
 (32)

gegen den Frequenzfaktor des i-ten Glowpeaks strebt. Der Verlauf der Asymptotik hängt sowohl vom Überlappungsgrad der einzelnen Glowpeaks als auch vom Unterschied zwischen den Aktivierungsenergien ab. Die Abb. 23 zeigt als Beispiel den Verlauf der Funktion f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit gleicher Aktivierungsenergie. In der Abb. 24 ist als weiteres Beispiel der Verlauf von f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit extrem unterschiedlichen Aktivierungsenergien dargestellt. Aufgrund von diesen und weiteren Beispielen können zusammenfassend die folgenden allgemeinen Aussagen über den Verlauf der Funktion f(T) gemacht werden:

 Bei teilweiser Überlappung zweier Glowpeaks, wie z.B. in Abb. 23, nimmt f(T) in einem schmalen Bereich zwischen den Maxima der beiden Glowpeaks imaginäre Werte an. Links und rechts von diesem Bereich strebt f(T) mit abnehmender bzw. zunehmender Temperatur gegen den Wert der Aktivierungsenergie des links bzw. rechts dominierenden Glowpeaks.



Abb. 23: Verlauf der Funktion f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit gleicher Aktivierungsenergie ($\Delta E_0 = 1,5 \text{ eV}$)





Abb.24 : Verlauf der Funktion f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit extrem unterschiedlicher Aktivierungsenergie ($\Delta E_{o_{I}} = 1,0 \text{ eV}, \Delta E_{o_{II}} = 2,0 \text{ eV}$)

Bei vollständiger Überlappung zweier Glowpeaks, wie z.B. in Abb. 24, ist f(T) im gesamten Peakbereich reell. In der Anstiegsflanke der Summenkurve nähert sich f(T) mit abnehmender Temperatur asymptotisch dem Wert der jeweils kleineren Aktivierungsenergie. In der Abstiegsflanke der Summenkurve strebt f(T) mit zunehmender Temperatur dem Wert der größeren Aktivierungsenergie zu, durchläuft ein Maximum und fällt danach wieder ab. Das Maximum von f(T) liegt in allen untersuchten Fällen jeweils 7 bis 12 % unter dem betreffenden Wert der Aktivierungsenergie. Zur exakten Bestimmung dieses Wertes muß der Glowpeak mit der kleineren Aktivierungsenergie von der Summenkurve separiert werden.

In dem durch diese beiden Modellfälle abgesteckten Rahmen ist das Verfahren auch auf Überlagerungen von mehr als zwei Glowpeaks anwendbar. Für die praktische Anwendung des Verfahrens ist allerdings eine sehr genaue Bestimmung der beiden Ableitungen der logarithmischen Emissionsintensität erforderlich. Hierbei hat sich das Verfahren von Savitzky und Golay [35] besonders gut bewährt. Bei diesem Verfahren wird durch eine ungerade Anzahl (m) benachbarter Punkte auf der Meßkurve mit Hilfe eines vereinfachten Least-Square-Fits ein Polynom n-ten Grades gelegt. Die beiden Ableitungen ergeben sich danach als einfache Linearkombination aus den m Meßwerten. Voraussetzung ist dabei, daß die Meßpunkte äquidistante Abszissenwerte haben und daß sie eine stetige Funktion repräsentieren.

Die Abbildungen 25 und 26 zeigen den nach diesem Verfahren mit m = 13 und n = 3 berechneten Verlauf der Funktion f(T) für die Glowkurven von BeO nach Anregung mit langsamen Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1.29 eV bzw. 1.49 eV. In diesen wie auch in allen anderen untersuchten Fällen ergibt sich trotz unterschiedlicher Glowkurvenform sowohl für f(T) als auch für g(T) nahezu derselbe Verlauf.





Abb. 25: Verlauf der Funktion f(T) (durchgezogene Kurve) für die Glowkurve von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,29 eV (gestrichelte Kurve, vgl. Abb. 17)



Abb. 26: Verlauf der Funktion f(T) (durchgezogene Kurve) für die Glowkurve von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,49 eV (gestrichelte Kurve, vgl. Abb. 19)

Aufgrund des Verlaufs der beiden Funktionen f(T) und g(T) wird die Glowkurve zwischen $185^{\circ}C$ und etwa $200^{\circ}C$ von einem Haftniveau mit den Parametern

$$\Delta E_{o} = 1,43 \pm 0,08 \text{ eV} \\ \ln(K_{o}) = 30,58 \pm 1,92 \\ (K_{o} = 1,9 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}) \end{bmatrix}$$
(Glowpeak A_{III})

bestimmt. Oberhalb von 210⁰C macht sich der Einfluß eines weiteren Haftniveaus mit den Parametern

$$\Delta E_{0} = 1,55 \pm 0,16 \text{ eV}$$

$$\ln(K_{0}) = 32,88 \pm 3,12$$

$$(K_{0} = 1,9 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1})$$
(Glowpeak A_{IV})

bemerkbar. In der Abstiegsflanke der Meßkurve liegt ein dritter Peak mit den Parametern

$$\Delta E_{o} = 1,06 \pm 0,12 \text{ eV}$$

$$\ln(K_{o}) = 20,23 \pm 2,06$$

$$(K_{o} = 6,1\cdot10^{8} \text{ s}^{-1})$$
(Glowpeak A_V)

Die beiden kleinen Glowpeaks ${\rm A}_{\rm I}$ und ${\rm A}_{\rm II}$ in der Anstiegsflanke der Meßkurve werden hier nicht näher untersucht.

Die mit den erhaltenen Parametern nach Gl. (21) berechneten Glowpeaks A_{III} , A_{IV} und A_V sind in den Abbildungen 16 bis 19 auf den Seiten 34 bis 37 nach der Methode der kleinsten Quadrate an die gemessenen Kurven annormiert worden. Wie diese Abbildungen zeigen, lassen sich die Meßkurven sowohl bei Photonenanregung als auch bei Elektronenanregung recht gut als Überlagerungen dieser drei Glowpeaks darstellen.

4.3 Diskussion des Emissionsmodells

Die Tabelle 2 zeigt zunächst noch einmal zusammenfassend die Ergebnisse der Glowkurvenanalyse des letzten Abschnitts. Aufgrund der Glowkurvenanalyse handelt es sich bei der photoneninduzierten TSEE von BeO im Bereich des Glowmaximums A um eine Überlagerung von zwei Glowpeaks (A_{III} und A_V) und bei der elektroneninduzierten TSEE um eine Überlagerung von fünf Glowpeaks (A_I bis A_V). Bei der elektroneninduzierten TSEE liefert der Glowpeak A_{III} den Hauptbeitrag zur Glowkurve, während die photoneninduzierte TSEE hauptsächlich vom Glowpeak A_V bestimmt wird.

| Methode der Glow- kurvenanalyse | Aktivierungs- energie ∆E _o | Frequenz- faktor K _o |
|------------------------------------|--|---|
| Differentielle Methode | 1.43 eV | 1.9·10 ¹³ s ⁻¹ |
| u . | 1.55 eV | 1.9·10 ¹⁴ s ⁻¹ |
| 11 | 1.06 eV | 6.1·10 ⁸ s ⁻¹ |
| Randall-Wilkins- | 2.07 eV | 2.8·10 ¹⁴ s ⁻¹ |
| Snift Iterationsmethode | 1.95 eV | 2.4·10 ¹³ s ⁻¹ |
| | Methode der Glow- kurvenanalyse Differentielle Methode " Randall-Wilkins- Shift Iterationsmethode | Methode der Glow- kurvenanalyseAktivierungs- energie △E oDifferentielle Methode1.43 eV"1.55 eV"1.06 eVRandall-Wilkins- Shift Iterationsmethode2.07 eV |

Tab. 2: Übersicht über die Ergebnisse der Glowkurvenanalyse von BeO (vgl. Abschn. 4.2)

Zum Vergleich sind in der Tabelle 3 einige der Literatur entnommene Werte für die Haftstellenparameter von BeO zusammengestellt. Die Werte von Holzapfel [19] sind nach der Methode von Balarin und Zetzsche [37] ermittelt worden, während Kriks [36] die Haftstellenparameter aus dem zeitlichen Abklingen der TSEE bei konstanter Temperatur (Decay) bestimmt hat. Die Werte von Holzapfel sind allerdings nicht immer mit den von ihm gemessenen Glowkurven konsistent.

| G] owpeak | Autor | Aktivierungs- energie ∆E _o | Frequenz- faktor K _o |
|------------|----------------|--|------------------------------------|
| O-Maximum | Holzapfel [19] | 1,45 eV | 3,8 10^{11} s ⁻¹ |
| O-Maximum | Kriks [36] | 1,50 eV | 3,1 10^{12} s ⁻¹ |
| V'-Maximum | Holzapfel [19] | 1,08 eV | 5,5 10^8 s ⁻¹ |
| V'-Maximum | Kriks [36] | 1,10 eV | 1,6 10^8 s ⁻¹ |
| V-Maximum | Holzapfel [19] | 2,07 eV | 1,5 10^{10} s ⁻¹ |

Tab. 3: Übersicht über die Ergebnisse der Glowkurvenanalyse von BeO aus der Literatur

So müßte das V-Maximum bei Zugrundelegung der angegebenen Haftstellenparameter bei 620^oC (gegenüber 570^oC in der von Holzapfel gemessenen Glowkurve) liegen. Auch müßte der vom O-Maximum und V'-Maximum gebildete Doppelpeak nicht bei 240^oC sondern zwischen 266^oC und 296^oC liegen. Insbesondere müßte das O-Maximum der Rechnung zufolge in der Abstiegsflanke des V'-Maximums (und nicht in dessen Anstiegsflanke) liegen.

Im Gegensatz dazu sind die von Kriks [36] angegebenen Werte mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit weitgehend konsistent. Aufgrund dieser Werte kann das O-Maximum mit dem A_{III}-Peak und das V'-Maximum mit dem A_v-Peak in dieser Arbeit identifiziert werden.

Wie die Messungen gezeigt haben, können die zu den Glowpeaks A_{III} und A_V gehörenden Haftstellen sowohl durch Elektronenanregung als auch durch Photoneneinwirkung besetzt werden. Bei Elektronenanregung werden darüberhinaus noch drei weitere Glowpeaks (A_I , A_{II} , A_{IV}) hervorgerufen, die bisher an BeO noch nicht beobachtet worden sind.

55

Wie die Messungen weiter gezeigt haben, müssen die Elektronen aus dem Außenraum mindestens eine mittlere Anregungsenergie von 1.25 eV haben, um die TSEE-aktiven Traps besetzen zu können. Nach dem in dieser Arbeit vorgeschlagenen Emissionsmodell müßte diese Schwellenenergie betragsmäßig gleich der kinetischen Energie der Exoelektronen sein. Dies wird durch die Messungen von Peterson [9] weitgehend bestätigt, der am gleichen Material (Brush Thermalox 995) Excelektronenenergien von maximal 1.5 eV und im Mittel 0.5 eV ermittelt hat. Die Messungen von Peterson haben allerdings auch gezeigt, daß die Exoelektronenenergien sehr stark von der Probenherstellung abhängen kann. So findet er bei Messungen an BeO-Proben von Berylco Exoelektronenenergien von 16 eV im Tieftemperaturpeak (Glowpeak A in dieser Arbeit) bzw. 10 eV im Hochtemperaturpeak (Glowpeak B in dieser Arbeit). Nach Li-Dotierung reduziert sich die Exoelektronenenergie bei den Berylco-Proben auf 3 eV, während bei den Brush-Proben ein leichter Anstieg auf 2.2 eV zu beobachten ist. Wenn man berücksichtigt, daß durch die Probenherstellung und insbesondere durch die Dotierung die Trapbesetzung im inneren Bereich der Oberflächenzone und damit auch die Höhe des Oberflächenpotentialwalls stark beeinflußt werden kann, sind diese Ergebnisse mit dem vorgeschlagenen Emissionsmodell durchaus vereinbar. Das gleiche gilt auch für die Ergebnisse von Kortov [10], der bei Messungen an keramischen BeO-Proben (wahrscheinlich eigene Herstellung) Exoelektronenenergien zwischen 0.4 und 1.3 eV gefunden hat.

Die Messungen zu Abschn. 4.1 haben weiter gezeigt, daß die TSEEaktiven Traps durch Elektronen aus dem Außenraum nur bis zu einem gewissen Grad besetzt werden können (siehe Abb. 20 auf Seite 39). Diese Selbstbegrenzung der Trapbesetzung kann auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells erklärt werden (siehe Seite 19). Insbesondere ist die Selbstbegrenzung ein Hinweis darauf, daß die Höhe des Oberflächenpotentialwalls während der Trapbesetzung zunimmt. Umgekehrt kann man aus diesem Befund schließen, daß die Höhe des Oberflächenpotentialwalls – und damit auch die kinetische Energie der Exoelektronen – während der Haftstellenentleerung abnimmt. Tatsächlich hat Schlenk [12] bei Metalloxiden auch einen Abfall der mittleren Exoelektronenenergie von 0.35 eV auf 0.15 bei zunehmender Stimulierungstemperatur festgestellt. Ebenso hat Peterson [9] im Hochtemperaturpeak von Berylco-Proben kleinere Exoelektronenenergien gemessen als im Tieftemperaturpeak.

Insgesamt gesehen wird also das Emissionsmodell durch die zitierten Ergebnisse anderer Autoren wie auch durch die eigenen Messungen weitgehend bestätigt. Man kann daher davon ausgehen, daß es sich zumindest bei der TSEE im Glowpeak A von BeO um einen reinen Oberflächeneffekt handelt.

Was die TSEE von LiF angeht, so haben die Messungen zunächst gezeigt, daß durch die niederenergetischen Elektronen aus dem Außenraum die gleichen Haftstellen besetzt werden wie bei Photoneneinwirkung. Ergänzende Messungen mit einem Thermolumineszenz-Reader haben ergeben, daß durch die Elektronen aus dem Außenraum auch bei hohen Anregungsenergien kein TL-Signal hervorgerufen werden kann. Demnach können bei einer Elektronenanregung in dieser Form keine Volumenhaftstellen besetzt werden. Das bedeutet aber, daß die TSEEaktiven Traps - zumindest teilweise - unmittelbar an der Oberfläche von LiF liegen müssen. Wenn man zudem berücksichtigt, daß die Aktivierungsenergie einer bestimmten TSEE-aktiven Störstelle an der Oberfläche nicht mit der Aktivierungsenergie der gleichen Störstelle im Volumen übereinstimmen kann, dann bedeutet dies, daß alle TSEEaktiven Traps unmittelbar an der Oberfläche liegen müssen. Demnach muß es sich auch bei der TSEE von LiF um einen reinen Oberflächeneffekt handeln.

Ausgehend von diesen Ergebnissen werden im folgenden noch einige Überlegungen zur Natur der Oberflächenhaftstellen angestellt.

Jeder Festkörper überzieht sich an Luft mit einer atmosphärischen Sorptionsschicht. In der Hauptsache handelt es sich bei den Sorbaten um Sauerstoff in den verschiedensten Formen. Die Sauerstoffsorption kann nach [28] in die folgenden Teilschritte aufgegliedert werden:

57

$$\begin{array}{ll} 0_2(gas) \rightleftharpoons 0_2(ads) & (Physisorption) \\ e + 0_2^{-}(ads) \rightleftharpoons 0_2(ads) \\ e + 0_2^{-}(ads) \rightleftharpoons 20^{-}(ads) = \left\{ \begin{array}{c} 0_2^{-} \rightleftharpoons 0^{-} + 0 \\ e + 0 \rightleftharpoons 0^{-} \end{array} \right\} \\ (Chemisorption) \\ e + 0^{-}(ads) \rightleftharpoons 0^{2^{-}}(ads) \end{array}$$

Die für die verschiedenen Stufen der Chemisorption erforderlichen Elektronen werden dem Leitungsband des Festkörpers entnommen. Durch die Lokalisierung dieser Elektronen im Sorbat entsteht eine negative Flächenladung mit einer resultierenden Feldkomponente senkrecht zur Oberfläche. Dadurch werden die Leitungselektronen mehr und mehr aus der oberflächennahen Zone verdrängt, so daß sich die Chemisorption selbst begrenzt (Pinch-off). Bei n-leitenden Materialien wie z.B. Be0 bildet sich durch die Chemisorption an der Oberfläche also eine Verarmungsrandschicht aus. Im Gleichgewicht herrschen dann an der Oberfläche die in Abb. 4 auf Seite 15 qualitativ dargestellten Potentialverhältnisse. Im Kristallvolumen entspricht der Potentialverlauf der Aufkrümmung des Leitungsbands eines n-leitenden Materials mit Verarmungsrandschicht [38].

Aufgrund dieser Potentialverhältnisse kann ein Elektronentransfer nur zwischen Sorbat und Leitungsband des Festkörpers, nicht aber zwischen Sorbat und Außenraum stattfinden. Die Sauerstoffionen können daher nicht als TSEE-aktive Traps fungieren. Dies wird durch die Messungen von Euler [20] bestätigt, der BeO-Proben im Ultrahochvakuum gereinigt und danach mit reinem Sauerstoff oxidiert hat. Die BeO-Proben zeigen nach dieser Behandlung keinerlei Exoelektronenemission. Im Gegensatz dazu wurde nach Oxidation mit nassem Sauerstoff eine sehr stabile und reproduzierbare TSEE beobachtet.

Bei der Sorption von Wassermolekülen bilden sich an der Oberfläche von BeO OH-Gruppen in zwei verschiedenen Bindungszuständen. Dieser Vorgang kann schematisch etwa wie folgt dargestellt werden:







Die OH⁻-Gruppe vom Typ 1 ist an ein Be²⁺-Ion gebunden, während die OH⁻-Gruppe vom Typ 2 von drei Be²⁺-Ionen umgeben ist. Die Existenz dieser beiden OH⁻-Gruppen ist von Tsyganenko und Filimonov [39] durch Infrarotmessungen an BeO nach gewiesen worden. Ermatov und Kosherov [40,41] haben zeigen können, daß die OH⁻-Gruppe vom Typ 1 selektiv durch die Alkylgruppe von Alkoholen substituiert werden kann. Aufgrund dieser Ergebnisse haben Siegel, Rasp und Kirchner [42] den Einfluß von Alkoholbehandlungen auf die TSEE von BeO im Bereich des Glowpeaks A näher untersucht. Sie haben dabei herausgefunden, daß die photoneninduzierte TSEE nach einer Oberflächenbehandlung mit CH₃OH auf 1,6 %, mit C₃H₅OH auf 40 % und mit C₃H₇OH auf 76 % des ursprünglichen Wertes sank. Demnach könnte ein Zusammenhang zwischen den zur photoneninduzierten TSEE gehörenden Haftstellen und den isolierten OH⁻-Gruppen an der Oberfläche von BeO bestehen.

Wie die Messungen zur vorliegenden Arbeit gezeigt haben, wird die photoneninduzierte TSEE im Bereich des Glowmaximum A hauptsächlich durch den Glowpeak A_V bestimmt, während die elektroneninduzierte TSEE in erster Linie vom Glowpeak A_{III} herrührt. Dies kann auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells erklärt werden, wenn man die zum Glowpeak A_{III} gehörenden Haftstellen mit den isolierten OH⁻-Gruppen vom Typ 1 identifiziert und die zum Glowpeak A_V gehörenden Haftstellen mit den OH⁻-Gruppen vom Typ 2. Da die beiden OH⁻-Gruppen in verschiedenen Ebenen angeordnet sind, schirmen sie sich bei der Haftstellenbesetzung durch die resultierende Feldkomponente gegenseitig ab. Wenn also die Elektronen aus dem Außenraum kommen, dann werden vorwiegend die OH⁻-Gruppen vom Typ 1 besetzt (\rightarrow Glowpeak A_{III}), kommen sie dagegen aus dem Materialinnern, wie z.B. bei Photoneneinwirkung, dann werden vorwiegend die OH⁻-Gruppen vom Typ 2 besetzt (\rightarrow Glowpeak A_V).

Zusammenfassend kann also festgestellt werden, daß alle wesentlichen Charakteristika der strahleninduzierten TSEE auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells zu erklären sind.

5. DOSIMETRISCHE ANWENDUNG DER TSEE

5.1 Dosimetrische Grundlagen

Die Aufgabe der Dosimetrie besteht in der Messung der Energie, die durch Strahlung auf Materie übertragen wird. Die Energieübertragung erfolgt in erster Linie durch Ionisation, die bei Festkörperdosimetern über die strahleninduzierte Haftstellenbesetzung direkt gemessen werden kann. Als Meßgröße dient die Energiedosis D, die nach [43] als Quotient aus ΔE_D und Δm definiert ist, wobei ΔE_D die durch ionisierende Strahlung der Materie eines Volumenelements zugeführte Energie und Δm die Masse der Materie in diesem Volumenelement sind.

$$D = \frac{\Delta E_D}{\Delta m}$$
(33)

Die Einheit der Energiedosis ist das Rad (1 Rad = 100 erg/g).

Die Energiedosis kann unter bestimmten Voraussetzungen aus den Strahlungsfeldgrößen berechnet werden. Zur quantitativen Beschreibung des Strahlungsfeldes dient die Größe des Teilchenflusses $\Phi'(E,t)$, die angibt, wieviele Teilchen mit der Energie E zur Zeit t pro Sekunde durch eine Kugel mit der Großkreisfläche 1 cm² hindurchtreten. Das Zeitintegral dieser Größe bezeichnet man als Teilchenfluenz $\Phi^*(E)$.

$$\Phi^{*}(E) = \int_{t_{1}}^{t_{2}} \Phi'(E,t) \cdot dt$$
 (34)

Von der Teilchenfluenz leiten sich die Energiefluenz F(E)

$$F(E) = E \cdot \Phi^{*}(E)$$
(35)

und die vektorielle Energiefluenz $\vec{G}(E)$

$$\vec{G}(E) = E \cdot \Phi^*(E) \cdot \vec{r}_0$$
(36)

ab, wobei r_0 der Einheitsvektor in Strahlungsrichtung ist. $\tilde{G}(E)$ gibt demnach die Größe und die Richtung des Energietransports im Strahlungsfeld an.

Photonenstrahlung (Röntgen- und γ -Strahlung) erzeugt in Materie durch Photoeffekt, Compton-Effekt und Paarbildung freie Elektronen. Die hierbei pro Massenelement auf Elektronen übertragene Energie bezeichnet man als Kerma. Die freigesetzten Elektronen haben – je nach der Photonenenergie – Reichweiten zwischen einigen µm und einigen mm (vgl. Abb. 30 auf Seite 71). Sie werden längs ihres Weges abgebremst und emittieren dabei Bremsstrahlung. Dieser Teil der Kerma (Bremsstrahlungsverlust) wird also wieder auf Photonen zurückübertragen und trägt nicht zur Energiedosis bei. Bei gegebener Photonenenergie E ist in einem bestimmten Material sowohl die Kerma K(E) als auch die um den Bremsstrahlungsverlust reduzierte Kerma K'(E) proportional zur Photonenenergiefluenz F(E). Es gilt also

$$K'(E) \sim F(E)$$

bzw. $K'(E) = \frac{\mu_e}{\rho}(E) \cdot F(E)$ (37)

wobei $\frac{\mu_{e}}{\rho}(E)$ eine energieabhängige Materialkonstante ist, die man allgemein als den Massenenergieabsorptionskoeffizienten bezeichnet. Die Energieabhängigkeit dieser Größe ist in Abb. 27 auf Seite 63 für einige Materialien, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit von Interesse sind, dargestellt. Im niederenergetischen Bereich wird der Massenenergieabsorptionskoeffizient durch den Photoeffekt bestimmt, der eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Kernladungszahl Z aufweist. Bei mittleren Energien herrscht der Compton-Effekt vor, der in erster Linie nur von der Elektronendichte abhängt. Oberhalb von 1 MeV setzt der Paarbildungseffekt ein, der wiederum eine starke Z-Abhängigkeit aufweist.

In einem Volumen V, das mit einem homogenen Material der Dichte ρ gefüllt ist, wird die Nettoenergie

$$\Delta E_{ph}(E) = \iint_{V} K'(E) \cdot \rho \cdot dV$$
(38)

von Photonen auf Sekundärelektronen übertragen. Ein Teil der Sekundärelektronen verläßt V und nimmt einen bestimmten Teil dieser Energie mit. Andererseits bringen in der Umgebung freigesetzte Sekundärelektronen einen gewissen Energiebetrag in das Volumen V zurück. Für den durch diesen Sekundärelektronenfluß bedingten Nettoenergietransport in das Volumen V hinein gilt

$$\Delta E_{el}(E) = - \iint_{A} \stackrel{\rightarrow}{G}_{el}(E) \cdot dA \qquad (39)$$

Dabei ist A die Oberfläche von V und $G_{el}(E)$ die vektorielle Energiefluenz der Sekundärelektronen, die von Photonen mit der Energie E freigesetzt worden sind. Das negative Vorzeichen ergibt sich daraus, daß bei geschlossenen Flächen der Oberflächenvektor d \vec{A} stets nach außen weist. Addiert man $\Delta E_{el}(E)$ zu $\Delta E_{ph}(E)$, so erhält man die in V insgesamt absorbierte Energie



Abb. 27: Energieabhängigkeit des Massenenergieabsorptionskoeffizienten für verschiedene Materialien [44]

.

$$\Delta E_{D}(E) = \iiint_{V} K'(E) \cdot \rho \cdot dV - \iint_{A} \stackrel{\rightarrow}{G_{el}(E)} \cdot dA$$
(40)

Nach dem Gaußschen Integralsatz ergibt sich hieraus

$$\Delta E_{D}(E) = \iiint_{V} K'(E) \cdot \rho \cdot dV - \iiint_{V} \operatorname{div} \widetilde{G}_{e1}(E) \cdot dV \quad (41)$$

In einem hinreichend kleinen Volumen ΔV , in dem die Integranden als konstant angesehen werden können, gilt dann

$$\Delta E_{D}(E) = K'(E) \cdot \rho \cdot \Delta V - \operatorname{div} \vec{G}_{el}(E) \cdot \Delta V \qquad (42)$$

Hieraus ergibt sich schließlich nach Gl. (33) mit $m = \rho \cdot \Delta V$ für die Energiedosis D(E)

$$D(E) = K'(E) - \frac{1}{\rho} \cdot \operatorname{div} \vec{G}_{el}(E)$$
(43)

Wenn die Sekundärelektronen durch die Oberfläche eines Volumenelements in beiden Richtungen gleich viel Energie transportieren (Sekundärelektronengleichgewicht), dann ist div $\vec{G}_{el}(E) = 0$ und es gilt

$$D(E) = K'(E) = \frac{\mu_e}{\rho}(E) \cdot F(E)$$
(44)

Dies ist z.B. in homogenen Materialien der Fall, wenn das betrachtete Volumenelement einige Sekundärelektronenreichweiten von der nächsten Grenzfläche entfernt ist. Der umgekehrte Fall liegt vor, wenn ein Volumenelement, dessen Dimensionen klein gegen die Reichweite der Sekundärelektronen sind, in einem Fremdmaterial eingebettet ist. Dann ist die Dosis ein Maß für die Kerma des Umgebungsmaterials und es gilt im Grenzfall des infinitesimal kleinen Volumenelements

$$D(E) = -\frac{1}{\rho} \cdot \operatorname{div} \vec{G}_{el}(E)$$
(45)

Hierauf beruht im wesentlichen das Bragg-Gray-Prinzip, das häufig bei Ionisatonskammern angewandt wird. Im Bereich der Festkörperdosimetrie
ist die Verwirklichung des Bragg-Gray-Prinzips jedoch sehr schwierig, weil es an hinreichend kleinen Dosimetern fehlt. Die Dimensionen eines Festkörperdosimeters mit der Dichte $\rho = 1$ g/cm³ müßten beispielsweise kleiner als 0,1 µm sein, wenn das Dosimeter im Energiebereich E > 10 keV als Bragg-Gray-Sonde verwendet werden soll. Bei einem TSEE-Dosimeter ist diese Bedingung senkrecht zur Oberfläche allerdings sehr gut erfüllt. Hieraus resultieren die speziellen dosimetrischen Anwendungsmöglichkeiten der TSEE. Im folgenden wird zunächst eine halbempirische Methode zur Berechnung der Energiedosis D(E) in der TSEE-Schicht entwickelt.

5.2 Dosimetrisches Modell der TSEE

Da in der Emissionsschicht im allgemeinen kein Sekundärelektronengleichgewicht herrscht, muß zur Berechnung der Energiedosis die vektorielle Energiefluenz der Sekundärelektronen $\vec{G}_{el}(E)$ bekannt sein. $\vec{G}_{el}(E)$ kann prinzipiell mit Hilfe einer Transportrechnung nach der Monte-Carlo-Methode ermittelt werden. Allerdings sind die hierfür erforderlichen Kristalldaten bei den meisten Dosimetermaterialien noch weitgehend unbekannt. Deswegen wird im folgenden eine einfachere halbempirische Methode zur Berechnung von $\vec{G}_{el}(E)$ entwickelt.

Jedes mit Materie erfüllte Volumenelement dV wirkt bei Bestrahlung mit Photonen als Quelle von Sekundärelektronen, deren Quellstärke dQ gleich der Kerma K' in dV ist.

$$dQ(E,\vec{r}) = K'(E,\vec{r}) \cdot \rho \cdot dV = \mu_{\rho}(E,\vec{r}) \cdot F(E,\vec{r}) \cdot dV$$
(46)

Dabei ist E die Photonenenergie und $\vec{r} = (x,y,z)$ der Ort des Volumenelements dV. Bei den folgenden Betrachtungen kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit angenommen werden, daß es sich um monoenergetische Strahlung handelt. Dann braucht die Energieabhängigkeit der einzelnen Größen formal nicht berücksichtigt zu werden und die Gleichungen vereinfachen sich in der Schreibweise. So geht Gl. (46) über in

$$dQ(\vec{r}) = K'(\vec{r}) \cdot \rho \cdot dV = \mu_{e}(\vec{r}) \cdot F(\vec{r}) \cdot dV \qquad (46a)$$

Die Richtungsverteilung der Sekundärelektronen ist in homogenen Materialien rotationssymmetrisch zur Einfallsrichtung der Primärstrahlung. Zur Vereinfachung der weiteren Rechnung wird diese Richtungsverteilung auf die sechs Halbachsen eines kartesischen Koordinationsystems projiziert. In dieser Projektion sei w_V die Wahrscheinlichkeit dafür, daß die Sekundärelektronen in Bezug auf die Einstrahlungsrichtung nach vorn diffundieren. Die entsprechenden Wahrscheinlichkeiten für Diffusion nach hinten oder in eine der vier seitlichen Raumrichtungen seien w_H bzw. w_S . Somit ist

$$w_V + w_H + 4 \cdot w_S = 1$$
 (47)

Die Abb. 28 zeigt die entsprechende Komponentenzerlegung der vektoriellen Energiefluenz der in einem Volumenelement dV entstandenen Sekundärelektronen. So gilt z.B. für die Komponente $dG_{y+}(x)$

$$dG_{x+}(x) = w_{V} \cdot dQ(x)$$
(48)

Mit Hilfe von Gl. (46a) kann man dafür auch schreiben

$$dG_{x+}(x) = w_V \cdot \mu_{\rho}(x) \cdot F(x) \cdot dx$$
(49)

Diese Komponente liefert an einem Punkt x_0 auf der x-Achse den Beitrag

$$dG_{X+}(x_0) = w_{V^{\bullet}\mu_e}(x) \cdot F(x) \cdot \exp\left[-\frac{x_0 - x}{R}\right] \cdot dx$$
 (50)

zur dortigen Energiefluenz in positver x-Richtung. Dabei ist R die Reichweite der Sekundärelektronen in dem betreffenden Material. Die gesamte Energiefluenz in positiver x-Richtung am Punkt x_o ergibt sich durch Integration der Einzelbeiträge:

$$G_{X+}(x) = \int_{\infty}^{X_0} w_{V^*} \mu_e(x) \cdot F(x) \cdot \exp\left[-\frac{X_0 - x}{R}\right] \cdot dx$$
 (51)





Wenn das Material längs der x-Achse inhomogen ist, dann muß die Exponentialfunktion in Gl. (50) dementsprechend aufgespalten werden. Damit zerfällt dann auch das Integral in Gl. (51) in mehrere Teilintegrale. Dies ist allerdings nur von Bedeutung, wenn die Inhomogenitäten nicht weiter als etwa 5 \cdot R vom Punkt x_o entfernt sind.

Für die Energiefluenz in negativer x-Richtung ergibt sich auf analoge Weise

$$G_{X-}(x_0) = \int_{x_0}^{\infty} w_{H^*} \mu_e(x) \cdot F(x) \cdot \exp\left[-\frac{x-x_0}{R}\right] \cdot dx$$
 (52)

Damit erhält man für die gesamte x-Komponente der vektoriellen Energiefluenz am Punkt x_o

$$G_{X}(x_{0}) = G_{X+}(x_{0}) - G_{X-}(x_{0})$$

$$G_{X}(x_{0}) = \int_{\infty}^{X_{0}} w_{V^{*}} \mu_{e}(x) \cdot F(x) \cdot \exp\left[-\frac{x_{0}-x}{R}\right] \cdot dx - \int_{X_{0}}^{\infty} w_{H} \cdot \mu_{e}(x) \cdot F(x) \cdot \exp\left[-\frac{x-x_{0}}{R}\right] \cdot dx$$
(53)

Für die y- und z-Komponente ergeben sich entsprechende Beziehungen mit $w_{\rm S}$ anstelle von $w_{\rm V}$ und $w_{\rm H}$

$$G_{y}(y_{0}) = \int_{\infty}^{y_{0}} w_{S} \cdot \mu_{e}(y) \cdot F(y) \cdot \exp\left[-\frac{y_{0}-y}{R}\right] \cdot dy - \int_{y_{0}}^{\infty} w_{S} \cdot \mu_{e}(y) \cdot F(y) \cdot \exp\left[-\frac{y-y_{0}}{R}\right] \cdot dy$$
(54)

$$G_{z}(z_{0}) = \int_{\infty}^{z_{0}} w_{S} \cdot \mu_{e}(z) \cdot F(z) \cdot \exp\left[-\frac{z_{0}-z}{R}\right] \cdot dz - \int_{z_{0}}^{\infty} w_{S} \cdot \mu_{e}(z) \cdot F(z) \cdot \exp\left[-\frac{z-z_{0}}{R}\right] \cdot dz$$
(55)

Mit Hilfe dieser Beziehungen kann die Divergenz der vektoriellen Energiefluenz der Sekundärelektronen

div
$$G_{e1} = \frac{d}{dx} \left[G_x(x) \right] + \frac{d}{dy} \left[G_y(y) \right] + \frac{d}{dz} \left[G_z(z) \right]$$
 (56)

und damit nach Gl. (43) auch die Energiedosis D berechnet werden. Es muß allerdings überprüft werden, inwieweit die empirischen Parameter w_V , w_H und w_S als material-, geometrie- und energieunabhängig angesehen werden können.

In der vorliegenden Arbeit werden zwei verschiedene Dosimeterausführungen in dieser Hinsicht untersucht. Es handelt sich in beiden Fällen um Sandwichdosimeter, bei denen die TSEE-Schicht mit einem Fremdmaterial abgedeckt ist. Im ersten Fall liegt das Dosimetermaterial in reiner Form vor, während es im zweiten Fall als feinkristallines Pulver in einem dritten Material eingebettet ist. Die erste Ausführungsform wird im folgenden als TSEE-Sandwichdosimeter und die zweite Ausführungsform als TSEE-Mischpulverdosimeter bezeichnet.

5.2.1 TSEE-Sandwichdosimeter

Zunächst wird als Anwendung der Gleichungen (53-56) die Energiedosis D(E) in der TSEE-Schicht des Sandwichdosimeters (SD) bei Einstrahlung von vorn berechnet. Das Koordinatensystem wird dabei so gelegt, daß die Einstrahlungsrichtung mit der positiven x-Richtung zusammenfällt (siehe Abb. 29). Die Dimensionen des Dosimeters sollen in y- und in z-Richtung groß im Vergleich zur Reichweite der Sekundärelektronen sein. Dann sind die Integrale in den Gleichungen (54,55) jeweils gleich und es ergibt sich

$$G_{y}(y) = G_{z}(z) = 0$$
 (57)

Bei Einstrahlung von vorn herrscht also nach diesem Modell senkrecht zur Einstrahlungsrichtung Sekundärlektronengleichgewicht.

Für die x-Komponente erhält man den folgenden Ausdruck

$$G_{X}(x) = F_{0} \cdot \exp(\tau_{\mu_{a}} \cdot a) \cdot \left\{ \mu_{e_{1}} \cdot R_{1} \cdot w_{V} \cdot \left[1 - \exp(-\frac{a}{R_{1}}) \right] \cdot \exp(\frac{a - x}{R_{2}}) + \mu_{e_{2}} \cdot R_{2} \cdot w_{V} \cdot \left\{ \exp[\tau_{\mu_{e_{2}}} \cdot (x - a)] - \exp(\frac{a - x}{R_{2}}) \right\} + (58) + \mu_{e_{2}} \cdot R_{2} \cdot w_{H} \cdot \left\{ \exp(\tau_{\mu_{e_{2}}} \cdot b - \frac{a + b - x}{R_{2}}) - \exp[\tau_{\mu_{e_{2}}} \cdot (x - a)] \right\} \right\}$$

Dabei sind μ_{a_1} und μ_{a_2} die linearen Schwächungskoeffizienten der beiden Materialien, die sich in dem hier interessierenden Energiebereich von etwa 20 keV bis 1250 keV um bis zu 10 % von den entsprechenden Energieabsorptionskoeffizienten μ_{e_1} unterscheiden können.

Für die Reichweite der Sekundärelektronen gilt in dem angegebenen Energiebereich in guter Näherung die Beziehung R = R_0/ρ . (Die Größe R_0 ist in Abb. 30 nach [45] als Funktion der Photonenenergie E dar-



Abb. 29: Schematische Darstellung eines TSEE-Sandwichdosimeters (SD)

gestellt). Mit Hilfe dieser Beziehung erhält man nach Differentiation von Gl. (58) zusammen mit der Bragg-Gray-Bedingung x-a<<R und den Gleichungen (37, 43, 56) für die Energiedosis in der TSEE-Schicht des SD bei Einstrahlung von vorn:

$$D = F_0 \cdot \exp(-\mu_{a_1} \cdot a) \cdot \left\{ w_V \left[1 - \exp(-\frac{a}{R_1}) \right] \cdot \left(\frac{\mu_e}{\rho} \right)_1 + \left[1 - w_V - w_H \cdot \exp(-\frac{b}{R_2}) \right] \cdot \left(\frac{\mu_e}{\rho} \right)_2 \right\}$$
(59)

Für die Messungen zur vorliegenden Arbeit sollen nur solche Sandwichdosimeter verwendet werden, deren Dimensionen a und b sehr viel größer als die Reichweite der Sekundärelektronen sind. Für diese SD vereinfacht sich Gl. (59) zu

$$D = F_0 \cdot \exp(-\mu_{a_1} \cdot a) \cdot \left[w_V \cdot \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_1 + (1 - w_V) \cdot \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_2 \right]$$
(60)



Abb. 30: Reichweite der Sekundärelektronen von Photonenstrahlung in Abhängigkeit von der Photonenenergie [45]

Folglich ist die Energiedosis in der TSEE-Schicht betragsmäßig gleich der Energiedosis in einem hypothetischen Material mit dem Massenenergieabsorptionskoeffizienten

$$\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho} = \exp(-\mu_{\mathbf{a}_{1}} \cdot \mathbf{a}) \cdot \left[w_{\mathbf{V}} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{1} + (1 - w_{\mathbf{V}}) \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{2} \right]$$
(61)

bei Sekundärelektronengleichgewicht. Aus diesem Grund wird die durch Gl. (61) definierte Größe im folgenden als effektiver Massenenergieabsorptionskoeffizient des SD bei Einstrahlung von vorn bezeichnet:

$$\begin{pmatrix} \frac{\lambda_{\mathbf{e}}}{\rho} \\ \text{SD,V} \end{pmatrix}^{=} \exp\left(-\mu_{\mathbf{a}_{1}} \cdot \mathbf{a}\right) \left[w_{V} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{1} + (1 - w_{V}) \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{2}\right]$$
(62)

Bei Einstrahlung von hinten ergibt sich auf analoge Weise:

$$\begin{pmatrix} \frac{\mu_{e}}{\rho} \end{pmatrix}_{\text{SD,H}} = \exp(-\mu_{a_{2}} \cdot b) \left[w_{H} \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{1} + (1 - w_{H}) \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{2} \right]$$
(63)

5.2.2 Mischpulverdosimeter

Zur Berechnung der Energiedosis in der TSEE-Schicht des Mischpulverdosimeters (MD) (siehe Abb. 31) wird angenommen, daß die Dosimeterkristallite in Form von Würfeln der Kantenlänge c vorliegen und in einer regelmäßigen kubischen Anordnung in einem Fremdmaterial eingebettet sind, wobei d der Abstand zwischen zwei benachbarten Kristalliten ist. Die freiliegende TSEE-Schicht der äußersten Kristallite wird von einem zweiten Fremdmaterial der Dicke a abgedeckt. Bei Einstrahlung von vorn, d.h. in positiver x-Richtung, liefert die Rechnung die folgenden Ausdrücke für die einzelnen Komponenten von div \vec{G}_{el} der Sekundärelektronen in der TSEE-Schicht

$$\frac{dG_{x}(x)}{dx} = -\rho_{2} \cdot F_{0} \cdot \exp(-\mu_{a_{1}} \cdot a) \cdot \left\{ \begin{pmatrix} \underline{\mu}e \\ \rho \end{pmatrix}_{1} \cdot w_{V} \cdot \left[1 - \exp(-\frac{a}{R_{1}}) \right] - \begin{pmatrix} \underline{\mu}e \\ \rho \end{pmatrix}_{2} \cdot \left[w_{V} + w_{H} \cdot \exp(-\frac{c}{R_{2}}) \right] + \\ + w_{H} \cdot \left\{ \begin{pmatrix} \underline{\mu}e \\ \rho \end{pmatrix}_{3} \cdot \left[\exp(\frac{d}{R_{3}}) - 1 \right] + \begin{pmatrix} \underline{\mu}e \\ \rho \end{pmatrix}_{2} \cdot \left[1 - \exp(-\frac{c}{R_{2}}) \right] \right\} \cdot \sum_{n=1}^{N} \exp\left[-n \cdot \left(\frac{d}{R_{3}} + \frac{c}{R_{2}}\right) \right] \right\} \right\}$$
(64)

$$\frac{dG_{y}(y)}{dy} = -\rho_{2} \cdot F_{0} \cdot \exp(-\mu_{a_{1}} \cdot a) \cdot w_{S} \cdot \left\{ \exp(-\frac{y}{R_{2}}) + \exp(-\frac{c-y}{R_{2}}) \right\} \cdot \left\{ -\left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{2} + \exp(-\frac{d}{R_{3}}) \cdot \left\{ \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{3} \cdot \left[\exp(\frac{d}{R_{3}}) - 1 \right] + \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{2} \cdot \left[1 - \exp(-\frac{c}{R_{2}}) \right] \right\} \cdot \sum_{n=0}^{M} \exp\left[-n \cdot \left(\frac{d}{R_{3}} + \frac{c}{R_{2}}\right) \right] \right\} \right\}$$
(65)



Abb. 31: Schematische Darstellung eines TSEE-Mischpulverdosimeters (MD)

•

Für die z-Komponente erhält man den gleichen Ausdruck wie für die y-Komponente. Die Zahlen N und M, die die Anzahl der Kristallite in der entsprechenden Raumrichtung angeben, sind bei den hier zur Verwendung kommenden Dosimetern im interessierenden Energiebereich E < 1250 keV nicht von Bedeutung, da die Summenglieder sehr schnell gegen Null gehen. Man kann aus diesem Grund für N und M auch ∞ setzen. Die y- und die z-Komponente verändern sich im Bereich der TSEE-Schicht und müssen deshalb über c gemittelt werden. Damit ergibt sich insgesamt ein sehr komplizierter Ausdruck für die Energiedosis. Für sehr feinkörniges Dosimeterpulver (c <R) vereinfacht sich dieser Ausdruck mit der Näherung

$$\frac{1}{c} \cdot \int_{0}^{c} \left[\exp\left(-\frac{y}{R_{2}}\right) + \exp\left(-\frac{c-y}{R_{2}}\right) \right] \cdot dy = 2 \cdot \frac{R_{2}}{c} \cdot \left[1 - \exp\left(-\frac{c}{R_{2}}\right) \right] \approx 2 \cdot \exp\left(-\frac{c}{R_{2}}\right)$$
(66)

zu

$$D = F_{0} \cdot \exp(-\mu_{a_{1}} \cdot a) \cdot \left\{ w_{V} \cdot \left[1 - \exp(-\frac{a}{R_{1}}) \right] \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho} \right)_{1} + (1 - w_{V}) \frac{\left[\exp(\frac{c}{R_{2}}) - 1 \right] \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho} \right)_{2} + \left[1 - \exp(-\frac{d}{R_{3}}) \right] \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho} \right)_{3}}{\exp(\frac{c}{R_{2}}) - \exp(-\frac{d}{R_{3}})} \right\}$$
(67)

Geht man wiederum davon aus, daß die Dicke des Abdeckmaterials groß gegen die Reichweite der Sekundärelektronen ist (a >> R), dann ergibt sich aus Gl. (67) für den effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten des MD bei Einstrahlung von vorn

$$\begin{pmatrix} \underline{\mu}_{e} \\ \rho \end{pmatrix}_{MD,V} = \exp(-\mu_{a_{1}} \cdot a) \cdot \left\{ w_{V} \cdot \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{1} + (1 - w_{V}) \frac{\left[\exp(\frac{c}{R_{2}}) - 1 \right] \cdot \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{2} + \left[1 - \exp(\frac{d}{R_{3}}) \right] \cdot \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{3}}{\exp(\frac{c}{R_{2}}) - \exp(-\frac{d}{R_{3}})} \right\}$$
(68)

Wenn das Abdeckmaterial mit dem Einbettungsmaterial identisch ist und wenn außerdem noch c << R_2 sowie a,d >> $R_1 = R_3$ ist, geht Gl. (67) über in

$$D = F_0 \cdot \exp(-\mu_a \cdot a) \cdot \left(\frac{\mu_e}{\rho}\right)$$
(69)

In diesem Fall hat das MD das gleiche Energieabsorptionsverhalten wie das Abdeckungs- bzw. Einbettungsmaterial, d.h. in diesem Fall ist das MD als Bragg-Gray-Sonde zu verwenden.

5.3 Herstellung und Vorbehandlung der Dosimeter

Als Ausgangsmaterial für die Dosimeterherstellung dient pulverförmiges LiF (Merck Suprapur, mindestens 99,98 % LiF, 10-40 µm Korngröße) sowie keramisches BeO (Brush Thermalox 995). Die BeOplättchen (6 mm Durchmesser, 1,5 mm Dicke) können ohne weitere Bearbeitung für dosimetrische Zwecke verwendet werden. Dagegen muß das LiF-Pulver zunächst in eine stabile Form gebracht werden. Zu diesem Zweck wird das Pulver mit einem Stempel in eine Aluminiumschale mit 10,5 mm Innendurchmesser gepreßt. Die Pulvermenge und der Stempeldruck werden so gewählt, daß sich eine feste 0,5 mm starke LiF-Schicht bildet. Zur Herstellung von Mischpulverdosimetern wird das LiF-Pulver in verschiedenen Gewichtsverhältnissen mit Graphit-, Eisen- und Zinnpulver (alle < 50 μm Korngröße) gemischt und ebenfalls in Aluminiumschalen gepreßt. Bei Voruntersuchungen zeigt sich, daß die LiF/Graphitund die LiF/Fe-Mischpulverdosimeter eine sehr instabile TSEE haben. Aus diesem Grund beschränken sich die weiteren Untersuchungen auf das Mischpulverdosimeter aus LiF und Zinn (LiF/Sn-MD). Das in die Aluminiumschale gepreßte Pulvergemisch wird kurzzeitig auf etwa 250⁰C erhitzt. Wenn der Gewichtsanteil des Zinn mindestens doppelt so groß wie der von LiF ist, ergibt sich nach Abkühlung eine glatte und sehr stabile Zinnschicht, in die die LiF-Kritallite schwimmend eingebettet sind. Für die Messungen zur vorliegenden Arbeit werden auf diese Weise zwei verschiedene Sorten von LiF/Sn-MD mit 67 bzw. 79 Gewichtsprozent Zinn hergestellt.



TSEE-Dosimeter (ca. 80 % der Originalgröße)

Als Abdeckmaterialien dienen Kupfer und Aluminium, deren Massenenergieabsorptionskoeffizienten sich im Bereich des Photoeffekts etwa um den Faktor 50 unterscheiden. Damit die Abschwächung der Primärstrahlung in beiden Abdeckmaterialien nicht entsprechend unterschiedlich ist, werden 0,1 mm starke Cu-Plättchen und 1 mm starke Al-Plättchen verwendet.

Die Empfindlichkeit der Dosimeter kann im allgemeinen durch eine Wärmevorbehandlung erhöht werden. Bei LiF ist diese Empfindlichkeitserhöhung jedoch nicht stabil, so daß die Dosimeter vor jeder Bestrahlung einer erneuten Wärmebehandlung unterzogen werden müßten. Außerdem ist die Empfindlichkeitserhöhung nicht reproduzierbar, so daß die jeweilige Empfindlichkeit der Dosimeter nie genau bekannt ist. Da es im vorliegenden Fall mehr auf die Reproduzierbarkeit als auf die Empfindlichkeit ankommt, werden die LiF-Dosimeter und die LiF/Sn-Dosimeter keiner gesonderten Wärmebehandlung unterzogen, sondern lediglich vor der ersten Bestrahlung einige Male in der Argon-Methan-Atmosphäre des Zählers auf die zurAuswertung der TSEE erforderliche Temperatur gebracht. Das bedeutet für die LiF-Dosimeter eine Aufheizung auf 350°C und für die LiF/Sn-Dosimeter eine Aufheizung auf 250°C.

5.4 Experimentelle Untersuchung der dosimetrischen Eigenschaften

Die dosimetrischen Eigenschaften der TSEE werden im wesentlichen von der Energie- und Richtungsabhängigkeit der Energiedosis D(E) in der TSEE-Schicht bestimmt. Bei gegebener Einstrahlungsrichtung gilt nach dem in Abschn. 5.2 entwickeltem Modell die allgemeine Beziehung

$$D(E) = \frac{\mu_e}{\rho}(E) \cdot F(E)$$
(70)

wobei $\frac{\mu_e}{\rho}(E)$ der effektive Massenenergieabsorptionskoeffizient des Dosimeters für die betreffende Einstrahlungsrichtung und F(E) die

eingestrahlte Photonenenergiefluenz sind. Aus meßtechnischen Gründen empfiehlt es sich, die Photonenenergiefluenz F(E) durch die direkte meßbare Standard-Gleichgewichts-Ionendosis X(E) zu substituieren. X(E) entspricht dem Ionisationsäquivalent der Energiedosis $D_A(E)$ in Luft bei Sekundärelektronengleichgewicht und wird in Röntgen (R) angegeben. Da der mittlere Energieaufwand zur Bildung eines Ionenpaares in Luft in dem hier interessierenden Energiebereich annähernd konstant ist, gilt in guter Näherung die Beziehung

$$X(E) = C \cdot D_{A}(E)$$
(71)

Dabei ist C = 1,15 R/rad eine energieunabhängige Konstante. Für die Energiedosis $D_{A}(E)$ gilt aufgrund von Gl. (44)

$$D_{A}(E) = \frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E) \cdot F(E)$$
(72)

wobei $\frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E)$ der Massenenergieabsorptionskoeffizient von Luft ist. Somit gilt für die Standard-Gleichgewichts-Ionendosis X(E)

$$X(E) = C \cdot \frac{\mu}{\rho} (E) \cdot F(E)$$
(73)

Setzt man diese Beziehung in Gl. (70) ein, so erhält man

$$D(E) = \frac{1}{C} \cdot \frac{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E)}{\frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E)} \cdot X(E)$$
(74)

Es ist allgemein üblich, die Dosimeter mit der γ -Strahlung von ¹³⁷Cs zu kalibrieren. Für diese Strahlenqualität (E₀ = 662 keV) gilt nach Gl. (74) speziell

$$D(E_{o}) = \frac{1}{C} \cdot \frac{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o})}{\frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E_{o})} \cdot X(E_{o}) = D_{o} \cdot X(E_{o})$$
(75)

Die durch diese Gleichung definierte Größe D_o stellt die Energiedosis in der TSEE-Schicht nach Exposition des Dosimeters im ¹³⁷Cs- γ -Strahlungsfeld bei der Standard-Gleichgewichts-Ionendosis 1 R dar. Mit Hilfe dieser Kenngröße kann die Konstante C in Gl. (74) elimieniert werden und es ergibt sich die grundlegende Beziehung

$$D(E) = D_{o} \cdot \frac{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o})}{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o}) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho}(E)} \cdot X(E)$$
(76)

Zur Vereinfachung der Schreibweise wird die Funktion

$$A(E) = \frac{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E_{o})}{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o}) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E)}$$
(77)

eingeführt, so daß Gl. (76) in die Form

$$D(E) = D_{0} \cdot A(E) \cdot X(E)$$
(78)

bzw.

$$\frac{D(E)}{D_0} = A(E) \cdot X(E)$$
(79)

übergeht. Auf der Basis dieser Beziehung werden in den folgenden Abschnitten die dosimetrischen Eigenschaften der TSEE näher untersucht. Im Mittelpunkt dieser Untersuchungen steht die Abhängigkeit der TSEE-Impulsrate Z von der Energiedosis in der TSEE-Schicht (Dosischarakteristik)

$$Z = Z \left[\frac{D(E)}{D_0} \right]$$
(80)

Die experimentelle Bestimmung der Dosischarakteristik erfolgt zweckmäßigerweise im γ -Strahlungsfeld von ¹³⁷Cs. Für diese Strahlenqualität reduziert sich Gl. (79) wegen $A(E_{0}) = 1$ zu

$$\frac{D(E_0)}{D_0} = X(E_0)$$
(81)

so daß die Dosischarakteristik die Form

$$Z = Z \left[X(E_0) \right]$$
(82)

annimmt. In dieser Form wird die Dosischarakteristik in Abschnitt 5.4.2 für die verschiedenen Dosimetertypen näher untersucht.

Bei Kenntnis der Dosischarakteristik kann die Funktion A(E), die in der Dosimetrie allgemein als Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige bezeichnet wird, experimentell bestimmt werden. Die Bestimmung dieser Funktion ist für die vorliegende Arbeit von besonderer Bedeutung, da aus ihr nach Gl. (77) die effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten berechnet werden können. Die Funktion A(E) wird, da sie unter anderem auch von der Einstrahlungsrichtung abhängt, in Abschnitt 5.4.3 für die verschiedenen TSEE-Sandwichdosimeter und TSEE-Mischpulverdosimeter bei Einstrahlung von vorn bzw. von hinten gemessen. Im Anschluß daran (Abschnitt 5.4.4) wird dann noch am Beispiel eines speziellen TSEE-Sandwichdosimeters die Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige für einige andere Einstrahlungsrichtungen ermittelt.

5.4.1 Reproduzierbarkeit

Als Maß für die Reproduzierbarkeit der TSEE-Impulsrate Z dient der Variationskoeffizient

$$\sigma(Z) = \frac{1}{Z} \cdot \sqrt{\frac{1}{N-1} \cdot \left[\sum_{i=1}^{N} (Z_i - Z_i)^2 \right]^2}$$

- Z_i = Impulsrate der i-ten Messung
 Z = arithmetisches Mittel der Impulsraten aller Messungen
- N = Anzahl der Messungen

Bei allen im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Dosimetern liegt der Variationskoeffizient $\sigma(Z)$ zunächst zwischen 0,1 und 1, das heißt, die Impulsraten $\rm Z_{i}$ streuen um etwa 10 bis 100 %. Häufig wird die Streuung auch noch von einer systematischen Empfindlichkeitsdrift überlagert. Bei den BeO-Dosimetern kann die Reproduzierbarkeit der TSEE im Glowpeak A allerdings wesentlich verbessert werden, wenn man das Dosimeter über die zur Auswertung der TSEE erforderliche Temperatur von etwa 350⁰C hinaus bis auf 600⁰C aufheizt und danach noch etwa fünf Minuten im Zähler läßt, so daß es sich in der Argon-Methan-Atmosphäre des Zählraums wieder ganz bis auf Zimmertemperatur abkühlen kann. Auch bei den LiF- und LiF/Sn-Dosimetern kann die Streuung der TSEE auf diese Weise verringert werden, allerdings ist bei diesen Dosimetern dann immer noch eine Drift der Empfindlichkeit zu beobachten. Bei LiF konnte ein Zusammenhang zwischen der Empfindlichkeits-Drift und dem Zählgasdruck p festgestellt werden. Wie die Abb. 32 zeigt, nimmt die Empfindlichkeit der LiF-Dosimeter bei p = 40 mm WS von Auswertung zu Auswertung im Mittel um 4,2 % zu, während sie bei p = 14 mm WS um 1,9 % abnimmt. Durch lineare Interpolation ergibt sich aus diesen beiden Werten eine konstante Empfindlichkeit bei p = 22 mm WS, was durch das Experiment bestätigt wird. Bei den LiF/Sn-Dosimetern hängt die Empfindlichkeitsdrift von der Zeit t_e ab, die das Dosimeter vor Beginn der Aufheizung dem Zählgas ausgesetzt ist. Bei $t_s = 80$ s ergibt sich von Auswertung zu Auswertung eine mittlere Empfindlichkeitszunahme von 1,95 %, während bei $t_s = 20$ s eine Empfindlichkeitsabnahme von 1,9 % zu beobachten ist (siehe Abb. 33). Hier erhält man durch lineare Interpolation eine konstante Empfindlichkeit bei $t_s = 50$ s, was wiederum durch das Experiment bestätigt wird.



Bei Zugrundelegung der beiden Werte p = 22 mm WS und t_s = 50 s erhält man für die verschiedenen Dosimetersorten bei jeweils 10 aufeinanderfolgenden Messungen des gleichen Dosimeters die in den Abbildungen 34 bis 36 dargestellten Glowkurven. Integriert man die einzelnen Glowkurven jeweils über den durch die gestrichelten Linien begrenzten Temperaturbereich, so ergeben sich die in Tab. 4 aufgeführten Werte für die Gesamtzahl der TSEE-Impulse Z_i. Die Variationskoeffizienten $\sigma(Z)$ liegen zwischen 0,015 (LiF) und 0,033 (LiF/Sn). Die dadurch gewährleistete Reproduzierbarkeit der TSEE-Impulsrate reicht für die Belange der vorliegenden Arbeit aus.



Abb. 34: Glowkurven eines LiF-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = 22 mm WS, $t_s = 50 s$)

| Aucuentung | TSEE-Impulsrate Z _i | | | |
|---|--|---|--|--|
| Auswertung | BeO | LiF | LiF/Sn | |
| 1. 2. 3. 4. 5. 6. 7. 8. 9. 10. | 93246 94053 96929 90736 92116 91055 91191 94889 91384 93051 | 20418 20611 20328 20795 20768 20348 20348 20444 20968 19968 20137 | 3091 3342 3120 3209 3166 3310 3286 3003 3176 3244 | |
| Mittelwert Z | 92844 | 20479 | 3195 | |
| Variations- koeffizient σ(Ζ) | 0,023 | 0,015 | 0,033 | |

Tab. 4: TSEE-Impulsraten der BeO-, LiF- und LiF/Sn-Dosimeter bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = 22 mm WS, t_s = 50 s)



Abb. 35: Glowkurven eines LiF/Sn-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = $22 \text{ mm WS}, t_s = 50 \text{ s}$)



Abb. 36: Glowkurven eines BeO-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = 22 mm WS, t_s = 50 s)

| Dosimeter | Reader | Zählgas- druck p [mm WS] | t _s [s] | q [K/s] | Endtemp. T [^O C] | Bereich der TSEE-Registrierung [°C] | Null- effekt [Cts.] |
|-----------|--------|--------------------------------|-----------------------|------------|------------------------------------|---|---------------------------|
| LiF | I | 22 | 50 | 2 | 350 | 150 - 300 | 310±50 |
| LiF/Sn | I | 22 | 50 | 2 | 250 | 120 - 220 | 150±40 |
| BeO | II | 22 | 50 | 5 | 600 | 150 - 350 | 220±30 |

Tab. 5: TSEE-Auswertedaten

Die Tabelle 5 zeigt nochmals zusammenfassend die bei diesen und allen folgenden Messungen zugrundegelegten Auswertedaten sowie den entsprechenden Nulleffekt der einzelnen Dosimeter.



Abb. 37: Häufigkeitsverteilung Abb. 38: Häufigkeitsverteilung der relativen Empfindlichkeit von 114 LiF-Dosimetern Dosimetern

In Abb. 37 ist die Häufigkeitsverteilung der relativen Empfindlichkeit ξ von 114 verschiedenen LiF-Dosimetern dargestellt. Die relative Empfindlichkeit ξ = 1 entspricht dabei dem arithmetischen Mittel aus den Empfindlichkeiten aller 114 Dosimeter. Der Variationskoeffizient der relativen Empfindlichkeit $\sigma(\xi)$ ist mit 0,28 sehr viel größer als der Variationskoeffizient der TSEE-Impulsrate $\sigma(Z)$ (siehe Tab. 4). Aus diesem Grund ist eine individuelle Kalibrierung der LiF-Dosimeter erforderlich. Entsprechendes gilt auch für die LiF/Sn-Dosimeter. Bei BeO dagegen beträgt $\sigma(\xi)$ nur O,044. Da die Häufigkeitsverteilung der relativen Empfindlichkeit dieser Dosimeter (siehe Abb. 38) zwei ausgeprägte Maxima hat, empfiehlt es sich, die BeO-Dosimeter in zwei Gruppen mit der relativen Empfindlichkeit $\xi < 1$ bzw. $\xi > 1$ einzuteilen. Innerhalb dieser beiden Gruppen ist der Variationskoeffizient $\sigma(\xi)$ vergleichbar mit $\sigma(Z)$, so daß keine individuelle Kalibrierung der Dosimeter mehr erforderlich ist.

5.4.2 Dosischarakteristik

Zur experimentellen Bestimmung der durch Gl. (82) definierten Dosischarakteristik werden die Dosimeter in einem kalibrierten $^{137}Cs-\gamma-$ Strahlungsfeld mit Standard-Gleichgewichtsionendosen zwischen 1 mR und 500 R beaufschlagt. Die dabei jeweils erhaltenen TSEE-Impulsraten sind in den Abbildungen 39 und 40 für die verschiedenen Dosimetersorten über der Standard-Gleichgewichts-Ionendosis aufgetragen.

Die Dosischarakteristiken können bei allen untersuchten Dosimetern durch die allgemeine Beziehung

$$Z[X(E_{o})] = Z(D_{o}) \cdot \frac{[X(E_{o})]^{S}}{1 + \tau_{eff} \cdot Z(D_{o}) \cdot [X(E_{o})]^{S}}$$
(84)

beschrieben werden. Dabei ist $Z(D_0)$ die TSEE-Impulsrate nach Exposition des Dosimeters in ¹³⁷Cs- γ -Strahlungsfeld bei $X(E_0) = 1$ R. Die Konstante s gibt die Steigung der Dosischarakteristik in doppellogarithmischem Maßstab an. Sie ist bei allen hier untersuchten Dosimetern kleiner als 1. Der Nenner von Gl. (84) ist ein Maß für die elektronischen Totzeitverluste bei der Impulsverarbeitung. Die Konstante τ_{eff} hängt sowohl von der Totzeit des Zählers als auch von der Glowkurvenform und der Aufheizgeschwindigkeit ab. Die Totzeitverluste können beliebig klein gehalten werden, wenn die Aufheizgeschwindigkeit so geregelt wird, daß die TSEE-Zählrate einen durch die Totzeit des Zählers vorgegebenen Höchstwert nicht übersteigt. Beim Reader I liegt dieser Wert bei $5 \cdot 10^4$ s⁻¹ beim Reader II etwa eine Größenordnung darüber.



Abb. 39: Dosischarakteristiken der LiF- und LiF/Sn-Dosimeter ($^{137}Cs-\gamma$ -Strahlung)



Abb. 40: Dosischarakteristik des BeO-Dosimeters ($^{137}Cs-\gamma-Strahlung$)

Die Abb. ⁴¹ zeigt als Beispiel die Dosischarakteristik des LiF-Dosimeters bei normaler Auswertung mit konstanter Aufheizgeschwindigkeit entsprechend Tab. 5 im Vergleich zur Dosischarakteristik des gleichen Dosimeters bei Zählratenbegrenzung durch regulierte Aufheizgeschwindigkeit. Bei Zählratenbegrenzung ergibt sich im gesamten erfaßten Ionendosisbereich der Zusammenhang

$$Z[X(E_0)] = Z(D_0) \cdot X(E_0)^{S}$$
 mit s = 0,7 (85)



Abb. 41: Dosischarakteristik des LiF-Dosimeters bei Normalauswertung bzw. bei Zählratenbegrenzung durch regulierte Aufheizgeschwindigkeit (¹³⁷Cs-γ-Strahlung)

Auch die Dosischarakteristiken der LiF/Sn- und BeO-Dosimeter lassen sich durch Zählratenbegrenzung in eine solche Form bringen. Dabei zeigt sich insbesondere, daß die Steigung s der Dosischarakteristiken der LiF/Sn-Dosimeter mit zunehmendem Sn-Anteil dem Wert 1 zustrebt (siehe Abb. 42). Der Wert von s hängt also offenbar von der effektiven Leitfähigkeit des Dosimeters ab. Dies deutet darauf hin, daß die Nichtlinearität der Dosischarakteristiken auf eine Aufladung der Dosimeteroberfläche während der Auswertung zurückzuführen ist. Da die Abweichung von der Linearität bei verschiedenen Dosimetern einer Charge gleich und bei wiederholter Messung auch reproduzierbar ist, können die TSEE-Dosimeter ohne Schwierigkeiten in der Dosimetrie eingesetzt werden.

Bei gleichzeitiger Verwendung von LiF und BeO kann der gesamte Ionendosisbereich von 1 mR bis 500 R erfaßt werden. Bei Zugrunde-



Abb.42: Steigung s der Dosischarakteristiken der LiF/Sn-Dosimeter in Abhängigkeit vom Sn-Anteil

legung der mittleren Schwankung des Nulleffekts (siehe Tab. 5) ergibt sich aus der Dosischarakteristik von BeO für die γ -Strahlung von ¹³⁷Cs eine 3σ -Nachweisgrenze von 14 μ R. Mit dem LiF-Dosimeter können noch 1,2 mR nachgewiesen werden, während die 3σ -Nachweisgrenze der beiden LiF/Sn-Dosimeter bei 65 mR bzw. 176 mR liegt.

5.4.3 Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige

Die Messung der Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige ist wie bereits erwähnt für die vorliegende Arbeit von besonderer Bedeutung, da sie eine Bestimmung der effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten der verschiedenen Dosimetertypen ermöglicht. Auf diese Weise kann das in Abschnitt 5.2 entwickelte dosimetrische Modell auf seine Allgemeingültigkeit hin untersucht werden. Insbesondere kann die Messung Aufschluß darüber geben, inwieweit die empirischen Parameter w_V, w_H und w_S als energie-, geometrie- und materialunabhängig anzusehen sind. Ferner kann auf diese Weise untersucht werden, ob die bei den Mischpulverdosimetern zugrundegelegte Geometrie (siehe Abb. 31 auf Seite 73) zur Berechnung der Energiedosis in der TSEE-Schicht geeignet ist und wie groß die empirischen Parameter c und d in dieser Geometrie anzusetzen sind. Unter diesen Gesichtspunkten sind die verschiedenen Dosimeterkombinationen ausgewählt worden, für die die Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige gemessen werden soll (siehe Tabelle 6).

| Dosimeter | Abdockung | Messung bei Einstrahlung von | |
|-----------------------------|------------------------|---------------------------------|--------|
| | Abdeekuirg | vorn | hinten |
| LiF-SD | keine | * | |
| LiF-SD | 1,0 mm Al | * | * |
| LiF-SD | 0,1 mm Cu | * | * |
| BeO-SD | 0,1 mm Cu ¹ | * | * |
| LiF/Sn-MD . (67 Gew% Sn) | keine | * | |
| LiF/Sn-MD (79 Gew% Sn) | keine | * | |
| LiF/Sn-MD (67 Gew% Sn) | O,1 mm Cu | * | |

¹beidseitige Abdeckung

Bei der Auswahl der Abdeckmaterialien haben unter anderem auch die folgenden Überlegungen eine Rolle gespielt:

- Die Abdeckung sollte möglichst dünn sein, damit die Schwächung der Primärstrahlung bei kleinen Photonenenergien möglichst gering bleibt.
- Andererseits sollte die Dicke des Abdeckmaterials möglichst groß gegen die Reichweite der Sekundärelektronen sein.

Die ausgewählten Materialstärken (1,0 mm Al bzw. 0,1 mm Cu) stellen einen Kompromiß zwischen diesen beiden Forderungen dar. Bei diesen Materialstärken fällt die Schwächung der Primärstrahlung nur bei Photonenenergien E < 40 keV ins Gewicht, während die Verluste der Sekundärelektronen erst bei Energien E > 1 MeV eine Rolle spielen.

Tab. 6: Zusammenstellung der untersuchten TSEE-Sandwichdosimeter (SD) und TSEE-Mischpulverdosimeter (MD)

Aus diesem Grund können zur Berechnung der effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten im Energiebereich E < 1 MeV die relativ einfachen Gln. (62, 63, 68) angewandt werden, was zu einer wesentlichen Vereinfachung der Interpretation der Meßergebnisse führt. Bei höheren Energien, d.h. insbesondere bei Bestrahlung mit ⁶⁰Co-Quellen müssen allerdings die Verluste der Sekundärelektronen berücksichtigt werden (siehe Gln. (59, 67)).

Bei den einseitig abgedeckten LiF-SD ist wegen der unterschiedlichen Schwächung der Primärstrahlung bei Einstrahlung von vorn und von hinten – insbesondere bei kleinen Photonenenergien – eine ausgeprägte Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige zu erwarten. Dieser in der Dosimetrie unerwünschte Effekt kann durch eine beidseitige Abdeckung des Dosimeters mit gleichem Material verringert werden. Dies soll am Beispiel des beidseitig mit 0,1 mm Cu abgedeckten BeD-SD näher untersucht werden.

Zur Messung der Standard-Gleichgewichtsionendosis X(E) am Bestrahlungsort dienen verschiedene an einen Primärstand der PTB angeschlossene Ionisationskammern. X(E) wird bei den Bestrahlungen jeweils so gewählt, daß die resultierende TSEE-Zählrate mindestens zwei Größenordnungen über der Schwankung des Nulleffekts (siehe Tab. 5) liegt. Aus den TSEE-Zählraten ergeben sich dann nach Gl. (79) bei Zugrundelegung der entsprechenden Dosischarakteristik die in den Abbildungen 43 bis 48 dargestellten Werte für die relative Dosisanzeige A(E). Außer den Meßwerten zeigen diese Abbildungen jeweils noch den theoretischen Verlauf von A(E), der allerdings erst in Abschnitt 5.5 berechnet wird. Wie die Messungen zeigen, steigt A(E) bei allen untersuchten Dosimetern zunächst mit zunehmender Energie an, durchläuft zwischen 30 und 50 keV ein Maximum und fällt danach auf 1 bei 662 keV ab. Der Maximalwert von A(E) stellt ein wesentliches Charakteristikum des Dosimeters dar. Bei dem LiF-SD ohne Abdeckung liegt der Maximalwert sowohl bei Ein-

strahlung von vorn (siehe Abb. 43) als auch bei Einstrahlung von hinten bei etwa 1,34. Bei dem LiF-SD mit 1 mm-Al-Abdeckung (siehe Abb. 44) erreicht A(E) einen Höchstwert von 2,2 bei Einstrahlung von vorn bzw. 1,7 bei Einstrahlung von hinten. Bei dem LiF-SD mit 0,1 mm-Cu-Abdeckung (siehe Abb. 45) nimmt A(E) Maximalwerte von 13,4 bzw. 10 an. Ahnliche Werte ergeben sich auch für das BeO-SD mit beidseitiger Cu-Abdeckung (siehe Abb. 46).

Bei dem LiF/SD-MD erhält man für beide Mischungsverhältnisse etwa den gleichen Verlauf von A(E) (siehe Abb. 47). Offenbar ist der Sn-Anteil in beiden Fällen so groß, daß die LiF-Kristallite innerhalb der Reichweite der Sekundärelektronen voll in Zinn eingebettet sind. Die weiteren Untersuchungen beschränken sich daher auf das empfindlichere der beiden LiF/Sn-MD (67 Gew.-% Sn). Deckt man dieses Dosimeter mit 0,1 mm Cu ab, so erhält man bei Einstrahlung von vorn die in Abb. 48 dargestellte Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige. Hier erreicht A(E) einen Maximalwert von etwa 16 bei 50 keV.

Insgesamt zeigt sich, daß das Energieabsorptionsverhalten der TSEE-Dosimeter durch die Abdeck- bzw. Einbettungsmaterialien in einem weiten Bereich variiert werden kann.



Abb. 43: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF-SD ohne Abdeckung bei Einstrahlung von vorn



Abb. 44: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF-SD mit 1 mm Al-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn bzw. von hinten



Abb. 45: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF-SD mit 0,1 mm Cu-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn bzw. von hinten



Abb. 46: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des beidseitig mit 0,1 mm Cu abgedeckten BeO-SD bei Einstrahlung von vorn bzw. von hinten



Abb. 47: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige der beiden LiF/Sn-MD (67 bzw. 79 Gew-% Sn) ohne Abdekkung bei Einstrahlung von vorn



Abb. 48: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF/Sn-MD (67 Gew-% Sn) mit 0,1 mm Cu-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn

5.4.4 Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige

Die Messungen des letzten Abschnitts haben unter anderem auch gezeigt, daß die relative Dosisanzeige A(E), insbesondere bei kleinen und mittleren Photonenenergien, sehr stark von der Einstrahlungsrichtung abhängen kann. Zur vollständigen Beschreibung der dosimetrischen Eigenschaften muß deshalb in die Funktion A(E) noch die Abhängigkeit vom Einstrahlungswinkel δ aufgenommen werden.

$$A(E) = A(E,\delta)$$
(86)

Unter dem Einstrahlungswinkel δ ist hier der Winkel zwischen der Einstrahlungsrichtung und der Flächennormalen der TSEE-Schicht zu verstehen. Die beiden Grenzfälle für Einstrahlung von vorn

$$A_{V}E) = A(E, \delta = 0^{0})$$
 (86a)

und für Einstrahlung von hinten

$$A_{\rm H}(E) = A(E, \delta = 180^{\circ})$$
 (86b)

sind für die LiF-SD bereits im letzten Abschnitt behandelt worden. In diesem Abschnitt soll nun am Beispiel eines beidseitig mit 0,1 mm Cu abgedeckten BeO-SD die Abhängigkeit $A(E) = A(E,\delta)$ für die übrigen Einstrahlungsrichtungen untersucht werden. Zu diesem Zweck werden die Dosimeter unter den Winkeln $\delta = 45^{\circ}$, 90° und 135° bestrahlt, wobei die Photonenenergie E jeweils im Bereich zwischen 23 und 662 keV variiert wird. Bezieht man die dabei erhaltenen Werte der relativen Dosisanzeige $A(E,\delta)$ jeweils auf $A_V(E) = A(E,\delta = 0^{\circ})$, so ergibt sich für die verschiedenen Energien die in Abb. 49 dargestellte Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige.



Abb. 49: Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des beidseitig mit 0,1 mm Cu abgedeckten BeO-SD für verschiedene Photonenenergien nach Messung und Rechnung

Diese Werte können recht gut durch die Funktion

$$\frac{A(E,\delta)}{A_V(E)} = 1 - \left[1 - \frac{A_H(E)}{A_V(E)}\right] \cdot \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right)$$
(87)

angenähert werden, die in der Abb. 49 für die verschiedenen Energien jeweils als durchgezogene Kurve dargestellt ist.

5.5 Diskussion des dosimetrischen Modells

Für die Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige gilt bei gegebener Einstrahlungsrichtung nach Gl. (77) auf Seite 79

$$A(E) = \frac{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o})}{\frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o}) \cdot \frac{\mu_{e}}{\rho}(E)}$$
(88)

Dabei sind $\frac{\mu_{e}}{\rho}(E)$ bzw. $\frac{\mu_{e}}{\rho}(E_{o})$ die effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten des Dosimeters für die betreffende Einstrahlungsrichtung und $\frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E)$ bzw. $\frac{\mu_{e}}{\rho_{A}}(E_{o})$ die Massenenergieabsorptionskoeffizienten von Luft.

Wie aus der Abbildung 27 auf Seite 63 hervorgeht, sind bei $E_0 = 662$ keV die Massenenergieabsorptionskoeffizienten aller hier interessierenden Materialien nahezu gleich. Demnach kann man die effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten $\frac{\mu_e}{\rho}(E_0)$ der verschiedenen Dosimeter nach den Gleichungen (62,63,68) auch ohne Kenntnis der Parameter w_V und w_H in sehr guter Näherung berechnen. Dadurch wird es möglich, die Werte von $\frac{\mu_e}{\rho}(E)$ für alle übrigen Energien nach Gl. (88) aus den Meßwerten der relativen Dosisanzeige zu ermitteln.

Zunächst werden auf diese Weise die effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten der verschiedenen Sandwichdosimeter bei Einstrahlung von vorn und von hinten ermittelt. Aus diesen Werten werden dann mit Hilfe der Gleichungen (62,63) für jede Energie die beiden Parameter w_V und w_H berechnet. Die so gewonnenen Werte schwanken jeweils um bis zu 30 %, eine systematische Energie- oder Materialabhängigkeit ist jedoch nicht zu erkennen. Wie aus den Gleichungen (62,63) hervorgeht, ist die Bestimmung von w_V und w_H umso genauer, je größer die Differenz zwischen den Massenenergieabsorptionskoeffizienten der beteiligten Materialien ist. Aus diesem Grund werden die Werte von w_V und w_H jeweils mit dieser Differenz gewichtet und gemittelt. Man erhält auf diese Weise für alle untersuchten Sandwichdosimeter und Einstrahlungsrichtungen übereinstimmend w_V = 0,22 und w_H = 0,11. Die mit diesen Werten für die verschiedenen Sandwichdosimeter nach den Gleichungen (62, 63,88) berechnete Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige ist in den Abbildungen 43 bis 48 im Vergleich zu den Meßwerten dargestellt. Als Maß für die mittlere Abweichung der berechneten Kurven von den Meßwerten wird die Größe

$$\sigma^{*} = \sqrt{\frac{1}{N-1} \cdot \left[\begin{array}{c} N & A(E_{i}) - A_{i} \\ \Sigma & A(E_{i}) \end{array} \right]^{2}}$$
(89)

eingeführt. Hierbei ist $A(E_i)$ die für die Energie E_i berechnete relative Dosisanzeige und A_i der entsprechende Meßwert. Die auf diese Weise ermittelten Werte von σ^* sind in Tabelle 7 für die verschiedenen Dosimetertypen und Einstrahlungsrichtungen aufgeführt.

Für die drei TSEE-Sandwichdosimeter ergeben sich mittlere Abweichungen von $\sigma^* < 12\%$. In diesem Rahmen können die Modellparameter w_V und w_H als material- und energieunabhängig angesehen werden. Dasselbe gilt dann auch für den Parameter w_S, für den man mit Hilfe von Gl. (47) den Wert w_S = 0,17 erhält. Dieser Wert entspricht dem arithmetischen Mittel aus w_V und w_H, was aufgrund des Rechenmodells auch zu erwarten ist.

Bei Kenntnis dieser Parameter kann man nun aus den Meßwerten der relativen Dosisanzeige der LiF/Sn-MD nach den Gln. (68,88) auch die beiden empirischen Parameter c und d bestimmen. So erhält man mit Hilfe einer Taylor-Entwicklung für die mittlere Kantenlänge der Dosimeterkritallite c = 1,7 μ m und für den mittleren Abstand d = 0,15 μ m.

| Dosimeter | Abdeckung | σ * bei Einstrahlung von | | |
|---------------------------|------------------------|------------------------------------|--------|--|
| | | vorn | hinten | |
| LiF-SD | 1,0 mm Al | 0,073 | 0,08 | |
| LiF-SD | 0,1 mm Cu | 0,09 | 0,12 | |
| BeO-SD | 0,1 mm Cu ¹ | 0,095 | 0,115 | |
| LiF/Sn-MD (67 Gew% Sn) | keine | 0,047 | | |
| LiF/Sn-MD (79 Gew% Sn) | keine | 0,071 | | |
| LiF/Sn-MD (67 Gew% Sn) | 0,1 mm Cu | 0,078 | | |

¹beidseitige Abdeckung

Tab. 7: Mittlere Abweichung σ^* der für die verschiedenen Dosimetertypen berechneten Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige von den entsprechenden Meßwerten.

Diese Werte sind erheblich kleiner, als es aufgrund der Dimensionen des verwendeten LiF-Pulvers (10 - 40 μ m Korngröße) zu erwarten ist. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei der Herleitung der Gl. 68 von einer Näherung Gebrauch gemacht wurde, die nur für sehr feinkörniges Dosimeterpulver (c < R₂) gilt (siehe Gl. (66)). Wie aus den Abbildungen 47 und 48 bzw. aus der Tabelle 7 hervorgeht, stimmt die mit diesen Werten berechnete Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige dennoch recht gut mit der Messung überein.

Angesichts der Einfachheit des Modells sowie der Tatsache, daß sich die Massenenergieabsorptionskoeffizienten der verwendeten Materialien im Bereich des Photoeffektes um bis zu zwei Größenordnungen unterscheiden, ist ein Gesamtfehler von 12 % relativ gering. Es ist anzunehmen, daß das Modell im Rahmen dieser Genauigkeit auch auf andere vergleichbare Dosimeter anwendbar ist.

Mit Hilfe des dosimetrischen Modells ist es möglich, den effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten von TSEE-Sandwich-
Dosimetern durch gezielte Auswahl des Abdeck- bzw. Einbettungsmaterials an den Massenenergieabsorptionskoeffizienten eines anderen interessierenden Materials anzunähern. Bei guter Annäherung ist dann die Energiedosis in der TSEE-Schicht und damit auch der Meßwert ein Maß für die Energiedosis in dem interessierenden Material. Ein solches Verhalten wird im folgenden kurz als Materialäquivalenz bezeichnet.

Wie die Messungen zu Abschnitt 5.4.4 ergeben haben, läßt sich die Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige recht gut durch die Beziehung

$$A(E,\delta) = A_{V}(E) - \left[A_{V}(E) - A_{H}(E)\right] \cdot \sin^{2}\left(\frac{\delta}{2}\right)$$
(90)

beschreiben (vgl. Gl. (87)). Demnach gilt für den Mittelwert der relativen Dosisanzeige von zwei identischen TSEE-Dosimetern mit antiparalleler Emissionsschicht ($\delta_1 = \delta_2 + 180^{\circ}$)

$$\overline{A}(E,\delta) = \frac{1}{2} \cdot \left[A(E,\delta) + A(E,\delta + 180^{\circ}) \right] = \frac{1}{2} \cdot \left[A_{V}(E) + A_{H}(E) \right]$$
(91)

Der Mittelwert $\overline{A}(E,\delta)$ hängt also nicht mehr vom Einstrahlungswinkel δ , sondern nur noch von der Photonenenergie E ab. Im unbekannten Strahlungsfeld kann man daher die Richtungsabhängigkeit der TSEE-Dosimeter eliminieren, indem man zwei identische Dosimeter mit entgegengesetzt orientierter TSEE-Schicht gleichzeitig bestrahlt und den Mittelwert aus beiden Dosisanzeigen bildet. Es empfiehlt sich, die möglichst beidseitig abgedeckten Dosimeter unmittelbar nebeneinander so anzuordnen, daß die TSEE-Schichten in der gleichen Ebene liegen. Auf diese Weise wird die gegenseitige Beeinflussung kleingehalten und eine gute Zuordnung der beiden Meßwerte ermöglicht. Zwei in dieser Form angeordnete Dosimeter werden im folgenden kurz als TSEE-Dosimeterpaar bezeichnet.

Um ein materialäquivalentes TSEE-Dosimeterpaar zu erhalten, muß aufgrund von Gl. (91) der mittlere effektive Massenenergieabsorptionskoeffizient

$$\frac{\overline{\mu_{\mathbf{e}}}}{\rho} = \frac{1}{2} \cdot \left[\left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho} \right)_{V} + \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho} \right)_{H} \right]$$
(92)

an den Massenenergieabsorptionskoeffizienten des interessierenden Materials angepaßt werden. Mit den Werten von w_V und w_H ergibt sich nach den Gleichungen (62,63) für den effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten des Sandwichdosimeters (SD) bei Einstrahlung von vorn

$$\binom{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}_{\mathbf{s}\mathbf{p}_{\mathbf{v}}} = \exp\left(-\mu_{\mathbf{a}_{1}} \cdot \mathbf{a}\right) \cdot \left[\frac{2}{9} \cdot \binom{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}_{1} + \frac{7}{9} \cdot \binom{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}_{2}\right]$$
(93)

bzw. bei Einstrahlung von hinten

$$\left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{\mathrm{SD}_{\mathbf{H}}} = \exp\left(-\mu_{\mathbf{a}_{2}} \cdot \mathbf{b}\right) \cdot \left[\frac{1}{9} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{1} + \frac{8}{9} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{2}\right]$$
(94)

Die Schwächungsterme in den Gleichungen (93,94) sind bei den hier in Betracht kommenden Dosimeterdimensionen nur im Bereich des Photoeffektes von Bedeutung. In diesem Bereich sind oberhalb der K-Kante die Absorptionskoeffizienten von verschiedenen Materialien zueinander proportional (vgl. Abb. 27 auf Seite 63), so daß sich zu einer gegebenen Schichtdicke b des Dosimetermaterials immer eine Schichtdicke a des Abdeckmaterials angeben läßt, für die die Beziehung

$$\mu_{\mathbf{a}_{1}} \cdot \mathbf{a} = \mu_{\mathbf{a}_{2}} \cdot \mathbf{b} \tag{95}$$

im ganzen Bereich des Photoeffektes oberhalb der K-Kante des schwersten verwendeten Materials erfüllt ist. Bei den folgenden Betrachtungen sei vorausgesetzt, daß die Schichtdicken a und b in dieser Weise aufeinander abgestimmt sind. Dann ergibt sich aus den Gleichungen (92-95) für den mittleren effektiven Massenenergieabsorptionskoeffizienten des Sandwichdosimeter-Paares (SDP)

$$\left(\frac{\overline{\mu_{e}}}{\rho}\right)_{sDP} = \exp\left(-\mu_{a_{1}} \cdot a\right) \cdot \left[\frac{1}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{1} + \frac{5}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho}\right)_{2}\right]$$
(96)

Das TSEE-SD-Paar hat also das gleiche Energieabsorptionsverhalten wie ein hypothetisches Material X mit dem Massenenergieabsorptionskoeffizienten

$$\left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{\mathbf{X}} = \frac{1}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{1} + \frac{5}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{\mathbf{e}}}{\rho}\right)_{2}$$
(97)

in der Tiefe

$$d \simeq \frac{\mu_{a} \cdot a}{\rho_{X} \cdot \left\{ \frac{1}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho} \right)_{1} + \frac{5}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{e}}{\rho} \right)_{2} \right\}}$$
(98)

bei Sekundärelektronengleichgewicht.

Um nun herauszufinden, welches Abdeckmaterial zur Erzielung einer bestimmten Materialäquivalenz am besten geeignet ist, empfiehlt es sich, den Massenenergieabsorptionskoeffizienten in die Einzelkomponenten aus Photoeffekt (p) und Compton-Effekt (c) aufzuspalten. Die Paarbildung kann bei der vorliegenden Betrachtung vernachlässigt werden, da sie erst bei Energien E > 1,02 MeV einsetzt. Mit

ergibt sich aus Gl. (97)

$$\left(\frac{\mu_{\mathbf{p}}}{\rho}\right)_{\mathbf{X}} + \left(\frac{\mu_{\mathbf{c}}}{\rho}\right)_{\mathbf{X}} = \frac{1}{6} \cdot \left[\left(\frac{\mu_{\mathbf{p}}}{\rho}\right)_{\mathbf{1}} + \left(\frac{\mu_{\mathbf{c}}}{\rho}\right)_{\mathbf{1}} \right] + \frac{5}{6} \cdot \left[\left(\frac{\mu_{\mathbf{p}}}{\rho}\right)_{\mathbf{2}} + \left(\frac{\mu_{\mathbf{c}}}{\rho}\right)_{\mathbf{2}} \right]$$
(100)

Wie aus der Abb. 27 auf Seite 63 hervorgeht, sind die Massenenergieabsorptionskoeffizienten aller Materialien im Bereich des Compton-Effektes nahezu gleich, so daß die Beziehung

$$\left(\frac{\mu_{c}}{\rho}\right)_{X} = \frac{1}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{c}}{\rho}\right)_{1} + \frac{5}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{c}}{\rho}\right)_{2}$$
(101)

für jede beliebige Materialkombination in sehr guter Näherung erfüllt ist. Subtrahiert man diese Beziehung von Gl. (100), so erhält man

$$\left(\frac{\mu_{p}}{\rho}\right)_{X} = \frac{1}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{p}}{\rho}\right)_{1} + \frac{5}{6} \cdot \left(\frac{\mu_{p}}{\rho}\right)_{2}$$
(102)

Da die Massenenergieabsorptionskoeffizienten der verschiedenen Materialien im Bereich des Photoeffektes oberhalb der K-Kante zueinander proportional sind, braucht man Gl. (102) nur für eine be-



Abb. 50: Zusammenhang zwischen dem Massenenergieabsorptionskoeffizienten des Abdeckmaterials $(\frac{\mu p}{\rho})_1$ und dem des Aquivalenzmaterials $(\frac{\mu p}{\rho})_{\chi}$ bei der Bezugsenergie E = 60 keV für das Dosimetermaterial LiF (TSEE-Sandwichdosimeterpaar)

stimmte Energie in diesem Bereich zu lösen, um das zur Erzielung der gewünschten Materialäquivalenz geeignete Abdeckmaterial herauszufinden. Wählt man als Bezugsenergie E = 60 keV und als Dosimetermaterial LiF, so ergibt sich nach Gl.(102) der in Abb. 50 dargestellte Zusammenhang zwischen $\binom{\mu_p}{\rho}_{\chi}$ und $\binom{\mu_p}{\rho_1}$. Wie aus dieser Abbildung hervorgeht, kann man z.B. mit Kalium als Abdeckmaterial das Energieabsorptionsverhalten von Magnesium simulieren. Ein LiF-SD-Paar mit Eisenabdeckung ist angenähert repräsentativ für Phosphor, während ein mit Calzium abgedecktes LiF-SD-Paar etwa das gleiche Energieabsorptionsverhalten wie Knochensubstanz hat. Um das Absorptionsverhalten der übrigen Materialien zu simulieren, muß man zwei verschiedene Abdeckmaterialien in einem bestimmten Flächenverhältnis miteinander kombinieren. Hierbei gibt es jeweils mehrere Kombinationsmöglichkeiten. Die nach Abb. 50 am besten geeigneten Kombinationen sind in der Tabelle 8 aufgeführt.

| Abdeckung des LiF-SD-Paares | Materialäquivalenz |
|-----------------------------|--------------------|
| 24 % K + 76 % S | Na |
| 100 % K | Mg |
| 81 % Ca + 19 % Fe | Al |
| 63 % Fe + 37 % Ca | Si |
| 93 % Fe + 7 % Ca | P |
| 69 % Cu + 31 % Fe | S |
| 72 % Cu + 28 % Sn | K |
| 57 % Cu + 43 % Sn | Ca |
| 96 % Ca + 4 % Fe | Knochen |

Tab. 8: Materialäquivalente LiF-SD-Paare

Auf gleiche Weise können auch für andere Dosimetersubstanzen die zur Erzielung einer bestimmten Materialäquivalenz am besten geeigneten Abdeckmaterialien ausgewählt werden.

6. ZUSAMMENFASSUNG

Ausgehend von einer allgemeinen qualitativen Betrachtung der Potentialverhältnisse an der Oberfläche von Festkörpern wird eine neue Modelltheorie der thermisch stimulierten Exoelektronenemission (TSEE) entwickelt. Nach dieser Theorie existieren zwei verschiedene Klassen von Elektronentraps im innern und äußeren Bereich der Oberflächenzone von Festkörpern. Die Traps im innern Bereich der Oberflächenzone sind auf chemisorbierten Sauerstoff zurückzuführen. Sie bestimmen im wesentlichen die Höhe des Potentialwalls an der Festkörperoberfläche. Aufgrund der herrschenden Potentialverhältnisse ist allerdings eine Elektronenemission aus diesen Traps in den Außenraum nicht möglich. Die Elektronentraps im äußeren Bereich der Oberflächenzone können dagegen aufgrund der Potentialverhältnisse zur Exoelektronenemission beitragen. Diese Traps sind vermutlich auf OH-Gruppen zurückzuführen, die sich bei der Sorption von Wassermolekülen an der Oberfläche bilden.

Auf der Basis des vorgeschlagenen Emissionsmodells sind unter anderem die folgenden charakteristischen Eigenschaften der TSEE zu erklären:

- Die mittlere kinetische Energie der Exoelektronen ist größer als es aufgrund der Boltzmann-Verteilung bei den herrschenden Stimulierungstemperaturen zu erwarten ist.
- Die kinetische Energie der Exoelektronen nimmt in vielen Fällen mit steigender Stimulierungstemperatur ab.
- TSEE-aktive Elektronentraps können eine negative Elektronenaffinität haben.
- Trocken oxidierte BeO-Proben sind (im Gegensatz zu naß oxidierten Proben) TSEE-inaktiv.
- Die TSEE-Glowkurven lassen sich mit Hilfe der Randall-

Wilkins'schen Elektronenkinetik rechnerisch darstellen. Die Glowkurven werden weder durch die Einflüsse des Oberflächenpotentialwalls noch durch Rekombinationsoder Retrappingeffekte deformiert.

Nach dem vorgeschlagenen Emissionsmodell können die TSEE-aktiven Elektronentraps im äußeren Bereich der Oberflächenzone durch freie Elektronen aus dem Außenraum besetzt werden, wenn deren Anregungsenergie größer als eine bestimmte Energieschwelle ist. Diese Energieschwelle ist nach dem Emissionsmodell betragsmäßig gleich der mittleren kinetischen Energie der Exoelektronen. Wenn die mittlere Anregungsenergie der freien Elektronen aus dem Außenraum nicht wesentlich größer als die Energieschwelle ist, kann nach dem vorgeschlagenen Emissionsmodell eine Begrenzung der Haftstellenbesetzung unterhalb der eigentlichen Sättigung auftreten.

Zur experimentellen Überprüfung des Emissionsmodells wird eine neue Methode der TSEE-Anregung mit extrem niederenergetischen Elektronen entwickelt. Bei Messungen an keramischem Berylliumoxid wird sowohl die nach dem Emissionsmodell zu erwartende Selbstbegrenzung der Haftstellenbesetzung als auch die Existenz der Energieschwelle nachgewiesen. Die Höhe der Energieschwelle ist mit den von anderen Autoren ermittelten Werten für die kinetische Energie der Exoelektronen von Berylliumoxid vereinbar.

Zur Identifizierung der an der TSEE beteiligten Elektronenhaftstellen werden zwei neue Methoden der Glowkurvenanalyse entwickelt. Die erste Methode basiert auf einer sehr genauen Näherungslösung für das Integral des Boltzmann-Faktors und gestattet einen schnell konvergierende iterative Bestimmung der Aktivierungsenergie aus der Glowkurvenfläche, der maximalen TSEE-Intensität und der Temperaturlage des Glowmaximums. Diese Methode ist allerdings nur bei Singlepeaks anwendbar. Die zweite Methode ist dagegen unter bestimmten Voraussetzungen auch auf Mehrfachpeaks anwendbar. Es handelt sich hierbei um eine differentielle Methode, bei der die Aktivierungsenergie aus der ersten und zweiten Ableitung der logarithmischen Emissionsintensität ermittelt wird. Mit Hilfe dieser Methode ist es möglich, die elektroneninduzierte TSEE von BeO in die konstituierenden Glowpeaks zu zerlegen. Zwei dieser Glowpeaks treten auch nach Photonenanregung auf. Damit ist sichergestellt, daß es sich zumindest bei der photoneninduzierten TSEE in diesen beiden Glowpeaks von Berylliumoxid um einen reinen Oberflächeneffekt handelt.

Bei Lithiumfluorid ist eine Identifizierung der elektroneninduzierten TSEE mit der photoneninduzierten TSEE auch ohne eine genauere Glowkurvenanalyse möglich. Ergänzende Messungen der Thermolumineszenz von Lithiumfluorid zeigen, daß bei der Elektronenanregung keine Volumentraps besetzt werden können. Es ist demnach davon auszugehen, daß es sich auch bei der photoneninduzierten TSEE von Lithiumfluorid um einen reinen Oberflächeneffekt handelt.

Auf der Basis dieser Ergebnisse wird ein halbempirisches Modell zur Berechnung der Energiedosis in extrem dünnen Schichten entwickelt und experimentell an verschiedenen Ausführungsformen von LiF- und BeO-Dosimetern auf seine Allgemeingültigkeit hin untersucht. In der ersten Ausführungsform ist das Dosimetermaterial kompakt, während es in der zweiten Ausführungsform als feinkristallines Pulver in einem Fremdmaterial eingebettet ist. In beiden Ausführungsformen ist die TSEE-Schicht während der Bestrahlung mit einem Fremdmaterial abgedeckt.

Die Messung der Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige ergibt, daß das halbempirische Modell im Energiebereich von 19 bis 1250 keV gut zur Berechnung der Energiedosis in der TSEE-Schicht geeignet ist. Insbesondere zeigt die Messung, daß die empirischen Modellparameter innerhalb einer Schwankungsbreite von 12 % als material-, geometrie- und energieunabhängig angesehen werden können. Damit ist es möglich, das Energieabsorptionsverhalten von TSEE-Dosimetern durch die Auswahl geeigneter Materialien gezielt zu verändern. Auf diese Weise kann das Energieabsorptionsverhalten aller Materialien, deren effektive Kernladungszahl zwischen etwa 9 und 25 liegt, simuliert werden.

Die Abhängigkeit des Meßwertes von der Strahleneinfallsrichtung kann bei gleichzeitiger Bestrahlung von zwei identischen Dosimetern mit entgegengesetzt orientierter TSEE-Schicht kompensiert werden. Somit können TSEE-Sandwichdosimeterpaare mit antiparalleler Emissionsschicht auch im unbekannten Strahlungsfeld zur materialäquivalenten Energiedosisbestimmung eingesetzt werden.

Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1: Energieverteilung der Elektronenzustände in einem Halbleiter mit Haftniveau
- Abb. 2: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons (a) im Bereich der Oberfläche eines idealen Festkörpers und (b) im Bereich einer Punktladung an der Grenzfläche zwischen zwei Medien mit den Dielektrizitätskonstanten ε_1 und ε_2
- Abb. 3: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons im Bereich eines unbesetzten Oberflächentraps (alle übrigen Oberflächentraps ebenfalls unbesetzt)
- Abb. 4: Normalkomponente der potentiellen Energie eines freien Elektrons im Bereich eines unbesetzten Oberflächentraps unter Gleichgewichtsbedingungen (die übrigen Oberflächentraps teilweise besetzt).
- Abb. 5: Normalkomponente der potentiellen Energie eines Elektrons im Bereich der Oberfläche eines Festkörpers mit zwei verschiedenen Oberflächentraps unter Gleichgewichtsbedingungen
- Abb. 6: Plattenkondensator zur Anregung der Dosimeter mit niederenergetischen Elektronen
- Abb. 7: Mittlere Anregungsenergie von freien Elektronen in N₂ bei Normaldruck in Abhängigkeit von der Feldstärke
- Abb. 8: Aufbau des Zählkopfes des ATOMIKA-Readers (Reader I)
- Abb. 9: Blockschaltbild des ATOMIKA-Readers mit peripheren Einrichtungen zur Impulsregistrierung
- Abb. 10: Zählcharakterisitiken der beiden Reader für TSEE (Glowpeak A von BeO) und γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle)
- Abb. 11: Glowpeak A von BeO-Dosimetern bei verschiedenen Zählerspannungen U
- Abb. 12: Glowkurven von LiF-Dosimetern (TLD-600) nach Anregung mit α- bzw. γ-Strahlung [33] und nach Anregung mit niederenergetischen Elektronen
- Abb. 13: Glowkurven von BeO-Dosimetern nach Anregung mit γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle) für die beiden Aufheizgeschwindigkeiten q = 0,13 K/s und q = 2,5 K/s (Reader II)
- Abb. 14: Peakhöhenverhältnis B/A bei den Glowkurven von BeO-Dosimetern in Abhängigkeit von der Aufheizgeschwindigkeit q

- Abb. 15: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach fünfmaliger Anregung mit γ -Strahlung (¹³⁷Cs-Quelle) und Auswertung (q = 5 K/s; Reader II)
- Abb. 16: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Photonen (q = 1 K/s; Reader II)
- Abb. 17: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,29 eV (q = 1 K/s; Reader II)
- Abb. 18: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,42 eV (q = 1 K/s; Reader II)
- Abb. 19: Glowkurve eines BeO-Dosimeters nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,49 eV (q = 1 K/s; Reader II)
- Abb. 20: TSEE-Intensität im Bereich des Glowmaximum A von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,25 eV bzw. 1,46 eV in Abhängigkeit von der Anregungszeit
- Abb. 21: Grenzwert der elektroneninduzierten TSEE-Intensität im Bereich des Glowmaximum A von BeO als Funktion der mittleren Anregungsenergie
- Abb. 22: Bestimmung der Haftstellenparameter für den Glowpeak B von BeO aus dem Randall-Wilkins-Shift
- Abb. 23 Verlauf der Funktion f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit gleicher Aktivierungsenergie ($\Delta E_0 = 1,5 \text{ eV}$)
- Abb. 24: Verlauf der Funktion f(T) für eine Überlagerung zweier Glowpeaks mit extrem unterschiedlicher Aktivierungsenergie ($\Delta E_{oI} = 1 \text{ eV}$, $\Delta E_{oII} = 2 \text{ eV}$)
- Abb. 25: Verlauf der Funktion f(T) für die Glowkurve von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,29 eV
- Abb. 26: Verlauf der Funktion f(T) für die Glowkurve von BeO nach Anregung mit Elektronen der mittleren Anregungsenergie 1,49 eV
- Abb. 27: Energieabhängigkeit des Massenenergieabsorptionskoeffizienten für verschiedene Materialien [44]
- Abb. 28 Komponentenzerlegung der vektoriellen Energiefluenz der in einem Volumenelement dV entstandenen Sekundärelektronen

Abb. 29: Schematische Darstellung eines TSEE-Sandwichdosimeters (SD) Abb. 30: Mittlere Reichweite des Sekundärelektronen von Photonenstrahlung in Abhängigkeit von der Photonenenergie [45] Abb. 31: Schematische Darstellung eines TSEE-Mischpulverdosimeters (MD) Abb. 32: Empfindlichkeitsdrift der LiF-Dosimeter in Abhängigkeit vom Zählgasdruck p Abb. 33: Empfindlichkeitsdrift der LiF/Sn-Dosimeter in Abhängigkeit von der Zählgasexpositionszeit t_s Abb. 34 Glowkurven eines LiF-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = $22 \text{ mm WS}, t_s = 50 \text{ s})$ Abb. 35: Glowkurven eines LiF/Sn-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen $(p = 22 \text{ mm WS}, t_s = 50 \text{ s})$ Abb. 36: Glowkurven eines BeO-Dosimeters bei 10 aufeinanderfolgenden Messungen unter der gleichen Bedingungen (p = $22 \text{ mm WS}, t_s = 50 \text{ s})$ Abb. 37: Häufigkeitsverteilung der relativen Empfindlichkeit von 114 LiF-Dosimetern Abb. 38: Häufigkeitsverteilung der relativen Empfindlichkeit von 63 BeO-Dosimetern Dosischarakteristiken der LiF- und LiF/Sn-Dosimeter Abb. 39: $(^{137}Cs - \gamma - Strahlung)$ Abb. 40: Dosischarakteristik des BeO-Dosimeters (¹³⁷Cs-_Y-Strahlung) Abb. 41: Dosischarakteristik des LiF-Dosimeters bei Normalauswertung bzw. bei Zählratenbegrenzung durch regulierte Aufheizgeschwindigkeit $(1.37 \text{Cs}-\gamma-\text{Strahlung})$ Abb. 42: Steigung s der Dosischarakteristiken der LiF/Sn-Dosimeter in Abhängigkeit vom Sn-Anteil Abb. 43: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF-SD ohne Abdeckung bei Einstrahlung von vorn Abb. 44: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF-SD mit 1 mm Al-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn

bzw. von hinten

| Abb. | 45: | Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des |
|------|-----|---|
| | | LiF-SD mit 0,1 mm Cu-Abdeckung bei Einstrahlung von |
| | | vorn bzw. von hinten |

- Abb. 46: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des BeO-SD mit 0,1 mm Cu-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn bzw. von hinten
- Abb. 47: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF/Sn-MD (67 bzw. 79 Gew.-% Sn) ohne Abdeckung bei Einstrahlung von vorn
- Abb. 48: Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des LiF/Sn-MD (67 Gew.-% Sn) mit 0,1 mm Cu-Abdeckung bei Einstrahlung von vorn
- Abb. 49: Richtungsabhängigkeit der relativen Dosisanzeige des beidseitig mit 0,1 mm Cu abgedeckten BeO-SD für verschiedene Photonenenergien
- Abb. 50 Zusammenhang zwischen $(\frac{\mu_p}{\rho})_X$ und $(\frac{\mu_p}{\rho})$ bei der Bezugsenergie E = 60 keV für das Dosimetermaterial LiF

Tabellenverzeichnis

| Tab. 1: | Effektive Energie der Röntgenstrahlung bei verschiede- |
|---------|--|
| | nen Röhrenspannungen und Filterkombinationen |

- Tab. 2: Übersicht über die Ergebnisse der Glowkurvenanalyse von BeO (vgl. Abschn 4.2)
- Tab. 3: Übersicht über die Ergebnisse der Glowkurvenanalyse von von BeO aus der Literatur
- Tab. 4: TSEE-Impulsraten der BeO-, LiF- und LiF/Sn-Dosimeter bei 10 aneinanderfolgenden Messungen unter den gleichen Bedingungen (p = 22 mm WS, $t_s = 50 s$)
- Tab. 5: TSEE-Auswertedaten für die LiF-, LiF/Sn- und BeO-Dosimeter
- Tab. 6: Zusammenstellung der untersuchten TSEE-Sandwichdosimeter (SD) und TSEE-Mischpulverdosimeter (MD)
- Tab. 7: Mittlere Abweichung o* der für die verschiedenen Dosimetertypen berechneten Energieabhängigkeit der relativen Dosisanzeige von den entsprechenden Meßwerten

Tab. 8: Materialäquivalente LiF-SD-Paare

Verzeichnis der Abkürzungen und Funktionen

| $\alpha = \alpha(T)$ | Wahrscheinlichkeit für Elektronenübergänge aus dem Haftniveau ins Leitungsband |
|--|---|
| δ | Einstrahlungswinkel |
| ε = ε(T) | TSEE-Intensität |
| μa = μ _a (E) | Linearer Schwächungskoeffizient |
| $\frac{\mu_e}{\omega} = \frac{\mu_e}{\omega}(E)$ | Massenenergieabsorptionskoeffizient |
| ξ | Relative Empfindlichkeit der TSEE-Dosimeter |
| ρ | Dichte |
| σ | Variationskoeffizient |
| o * | Mittlere Abweichung der berechneten relativen Dosisanzeige von den Meßwerten der relativen Dosisanzeige |
| τ | Zeitkonstante bei der TSEE-Anregung mit niederener- getischen Elektronen |
| ^T eff | Effektive Totzeitkonstante der Reader bei zeitlinea- rer Temperaturerhöhung |
| φ | Austrittsarbeit |
| $\phi^{*} = \phi^{*}(E)$ | Teilchenfluenz |
| $\phi' = \phi'(E,t)$ | Teilchenfluss |
| Ψ | Elektronenaffinität |
| $\omega = \omega(T)$ | Emissionswahrscheinlichkeit |
| a | Dicke des Abdeckmaterials beim Sandwichdosimeter |
| b | Dicke der Dosimetermaterialschicht beim Sandwich- dosimeter |
| С | Mittlere Kantenlänge der Dosimeterkristallite beim Mischpulverdosimeter |
| d | Mittlerer Abstand der Dosimeterkristallite beim Mischpulverdosimeter |
| f* = f*(E,T) | Fermi - Dirac - Verteilung |

differentiellen Glowkurvenanalyse Funktion zur Bestimmung des Frequenzfaktors bei der g = g(T)differentiellen Glowkurvenanalyse Haftelektronenkonzentration h = h(T,t)Strahleninduzierte Haftelektronenkonzentration ho Boltzmann-Konstante k Massenelement Δm Zählgasdruck р Aufheizgeschwindigkeit q Mittlerer Abstand zwischen zwei benachbarten Zentren r bei Auger-Rekombination Steigung der Dosischarakteristik in doppellogarithmi-S scher Darstellung t Zeit Wahrscheinlichkeiten für Diffusion der Sekundärelektro- W_V, W_H, W_S nen nach vorn, hinten bzw. zur Seite (bezogen auf die Einstrahlungsrichtung der Primärphotonen) A = A(E)Relative Dosisanzeige Â **Oberflächenvektor** D = D(E)Energiedosis Ε Energie Mittlere Anregungsenergie von freien Elektronen aus dem EA Außenraum Fermi-Energie EF Ekin Kinetische Energie der Exoelektronen Potentielle Energie von Leitungselektronen im Grundzu-E stand (im Bändermodell) Potentielle Energie von freien Elektronen im Außenraum E (bezogen auf das Bändermodell) Potentielle Energie von Elektronen im Haftniviau (bezo-Е_т gen auf das Bändermodell)

f = f(T)

Funktion zur Bestimmung der Aktivierungsenergie bei der

| | E _S | Energieschwelle für Besetzung der TSEE-Traps durch freie Elektronen aus dem Außenraum |
|---|--------------------|--|
| | ΔEL | Aktivierungsenergie für Elektronenemission aus dem Haft- niveau in das Leitungsband |
| | ∆ ^E o | Aktivierungsenergie für Elektronenemission aus dem Haft- niveau in den Außenraum |
| | ∆e ^D | Nettoenergieübertragung durch ionisierende Strahlung auf Materie in einem Volumen V |
| | ^{∆E} ph | Nettoenergieübertragung von Photonen auf Sekundärelektro- nen in einem Volumen V |
| · | ∆ ^E el | Nettoenergietransport durch Sekundärelektronen in ein Volumen V hinein |
| | F(E) | Energiefluenz |
| | F _o (E) | Energiefluenz am Bestrahlungsort eines Dosimeters |
| | Ġ(E) | Vektorielle Energiefluenz |
| | Н | Fläche unter der Glowkurve bei Singlepeaks |
| | K = K(E) | Kerma |
| | K' = K'(E) | Kerma abzüglich Bremsstrahlungsverlust |
| | К _о | Frequenzfaktor |
| | LB | Leitungsband |
| | MD | Mischpulverdosimeter |
| | Q | Quellstärke der Sekundärelektronen |
| | R | Reichweite der Sekundärelektronen |
| | Ro | Reichweite der Sekundärelektronen bezogen auf die Dichte des Materials |
| | SD | Sandwichdosimeter |
| | Т | Temperatur |
| | TL | Thermolumineszenz |
| | TSEE | Thermisch stimulierte Exoelektronenemission |
| | TSL | Thermisch stimulierte Leitfähigkeitserhöhung |

.

- V Volumen
- VB Valenzband
- X Standard-Gleichgewichts-Ionendosis

-

Z TSEE-Impulsrate

Literaturverzeichnis

| Ľ | 1 | 3 | Kramer, J.: Z. Physik <u>125</u> , 739 (1969) |
|---|----|---|---|
| C | 2 | ב | Kramer, J.: Z. Physik <u>128</u> , 538 (1950) |
| C | 3 | C | Kramer, J.: Z. Physik <u>129</u> , 34 (1950) |
| C | 4 | 3 | Bohun, A.: Phys. stat. sol. <u>3</u> , 779 (1963) |
| E | 5 | כ | Scharmann, A.: Festkörperprobleme <u>6</u> , 106, (1967) |
| Ľ | 6 | C | Becker, K.: Atomic Energy Rev. VIII, <u>1</u> , 173 (1970) |
| E | 7 |] | Proc. Third Int. Symp. Exoelectrons, Braunschweig 1970; PTB-Mitteil. <u>80</u> , 318 (1970) |
| C | 8 | כ | 4th Int.Symp.Exoelectron Emission and Dosimetry, Liblice 1973 (ed. A. Bohun, Inst. f. Festkörperphysik d. Tschech. Ak. d. Wiss., Prag) |
| Ľ | 9 | נ | Peterson, D.D.et al: 4th Int. Symp. Exoelectron Emission and Dosimetry, Liblice 1973 (ed.A. Bohun, Inst. f. Festkörperphysik d. Tschech. Ak.d.Wiss., Prag), 90 |
| C | 10 | C | Kortov, V. S.: Phys.stat.sol. (a) <u>19</u> , 59 (1973) |
| Γ | 11 | ב | Schlenk, W.: Phys.stat.sol. (a) <u>30</u> , K 151 (1975) |
| Ľ | 12 | נ | Schlenk, W.: Diss.Münster 1974; Phys.stat.sol. (a) <u>33</u> , 217 (1976) |
| C | 13 |] | Becker, K.: 4th Int.Symp.Exoelectron Emission and Dosi- metry, Liblice 1973 (ed.A.Bohun, Inst.f.Festkörperphy- sik d. Tschech. Ak.d.Wiss., Prag), 218 |
| Ľ | 14 | C | Ennow, K.R.: ibid, 255 |
| C | 15 | כ | Ritz, V.H., Attix, F.H.: Appl.Phys.Lett. <u>23</u> , 166 (1973) |
| C | 16 | 3 | Proc. 5th Int.Symp.Exoelectron Emission and Dosimetry, Zvikov 1976 (ed. A.Bohun, Inst.f.Festkörper-Physik d. Tschech. Akad.d.Wiss., Prag und A.Scharmann, I.Phys. Inst.Univ. Gießen) |
| C | 17 | נ | Holzapfel, G.: Proc. 6th Int.Symp.Photon Detectors, Siófok 1974 (ed.J.Schanda, IMEKO-Secret.H-1371, Buda- pest (1974)) |
| Ε | 18 | C | Holzapfel, G.: Vacuum <u>22</u> , 10 (1972) |
| | | | |

.

| Γ | 19 | כ | Holzapfel, G.: Diss. D 83, Techn.Univ.Berlin (1968) |
|---|----|---|--|
| C | 20 | C | Euler, M., Scharmann, A.: Z.Physik B <u>22</u> , 373 (1975) |
| E | 21 | J | Holzapfel, G., Krystek, M.: Phys.stat. sol. (a) |
| C | 22 | J | Kelly, P., Laubitz, M.J., Bräunlich, P.: Phys. Rev. B <u>4</u> , 1960 (1971) |
| Ľ | 23 | С | Bohun, A.: Czech. J. Phys. <u>5</u> , 64 (1955) |
| Ε | 24 | Э | Käämbre,H.F., Bohun, A.: Czech.J.Phys. B <u>14</u> , 54 (1964) |
| C | 25 | 3 | Glaefeke,H. et al.: 4th Int.Symp.Exoelectron Emission and Dosimetry, Liblice 1973 (ed.A.Bohun, Inst.f.Festkör- per-Physik d.Tschech.Ak.d.Wiss., Prag) 114 |
| C | 26 | Э | Drenckhan,J., Gross,H., Glaefeke,H.: Phys.stat.sol.(a) <u>2</u> K 51; <u>3</u> , K 185 (1970) |
| Ε | 27 | נ | Piróg,M.: Proc. 5th Int.Symp.Exoelectron Emission and Dosi- metry, Zvikow 1976 (ed. A.Bohun, Inst.f.Festkörper-Physik d.Tschech.Akad.d.Wiss., Prag und A.Scharmann, I.Phys. Inst.Univ. Gießen), 270 |
| Γ | 28 | ב | Scott,C.G., Reed, C.E.: Surf.phys. of phosphors and semicond., Academic Press (1975) S. 230 ff |
| Γ | 29 | J | Bicherin, V., Käämbre, H.: Phys.stat.sol. <u>31</u> , 493 (1969) |
| ٢ | 30 | 3 | Bicherin,V.: Phys. stat. sol. (a) <u>5</u> , 519 (1971) |
| Ε | 31 | C | Crase,K.W., Becker,K., Gammage, R.B.: ORNL-TM-3572 (1971) |
| C | 32 | כ | Rossi,B., Staub,H.: Ionization Chambers and Counters, Mc Graw-Hill, New York (1949) |
| C | 33 | ב | Becker,K., Cheka,J.S., Oberhofer,M.: Health Phys. <u>19</u> ,391 (1970) |
| Ε | 34 | ב | Randall,J.T., Wilkins,M.H.F.: Proc.Roy.Soc. <u>A 184</u> , 366-390 (1945) |
| Ε | 35 | C | Savitzky,A., Golay,M.: Anal.Chem. <u>36</u> , 1627 (1964) |
| Ε | 36 | כ | Kriks,HJ.: PTB-FMRB-48 (1973) |
| Ε | 37 | כ | Balarin,M., Zetzsche,A.: Phys.stat.sol. <u>2</u> , 1670 (1962) |
| Ε | 38 | נ | Scott,C.G., Reed,C.E.: Surf.phys.of phosphors and semicond., Academic Press (1975) S. 146 ff |

| C | 39 | נ | Tsyganeko,A.A., Filimonov,V.N.: Dokl.Akad.Nauk SSSR 203, 636 (1972) |
|---|----|---|--|
| Ę | 40 | Э | Ermatov, S.E., Kosherov, T.S.: Izv. Akad.Nauk Kazak SSSR, Ser. fizmat. <u>12</u> , 29 (1974) |
| ٢ | 41 | С | Ermatov,S.E.:Zh.prik].Spektroskopii <u>23</u> , 14 (1975) |
| C | 42 | ב | Siegel,V., Rasp,W., Kirchner,HH.: Phys.stat.sol.(a) <u>34</u> , K 203 (1976) |
| C | 43 | J | Recommendations of the IRCU, Report 10 a, National Bureau of Standards, Handbook 84, Wash. (1962) |
| C | 44 | ב | Jaeger,R. et al.: Engineering Comp.Rad.Shield., Springer Berlin (1968) |
| C | 45 | C | Jaeger, R.G.: Dosimetrie und Strahlenschutz, Thieme, Stuttgart (1959) |