

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

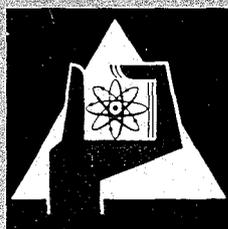
Oktober 1967

KFK 686

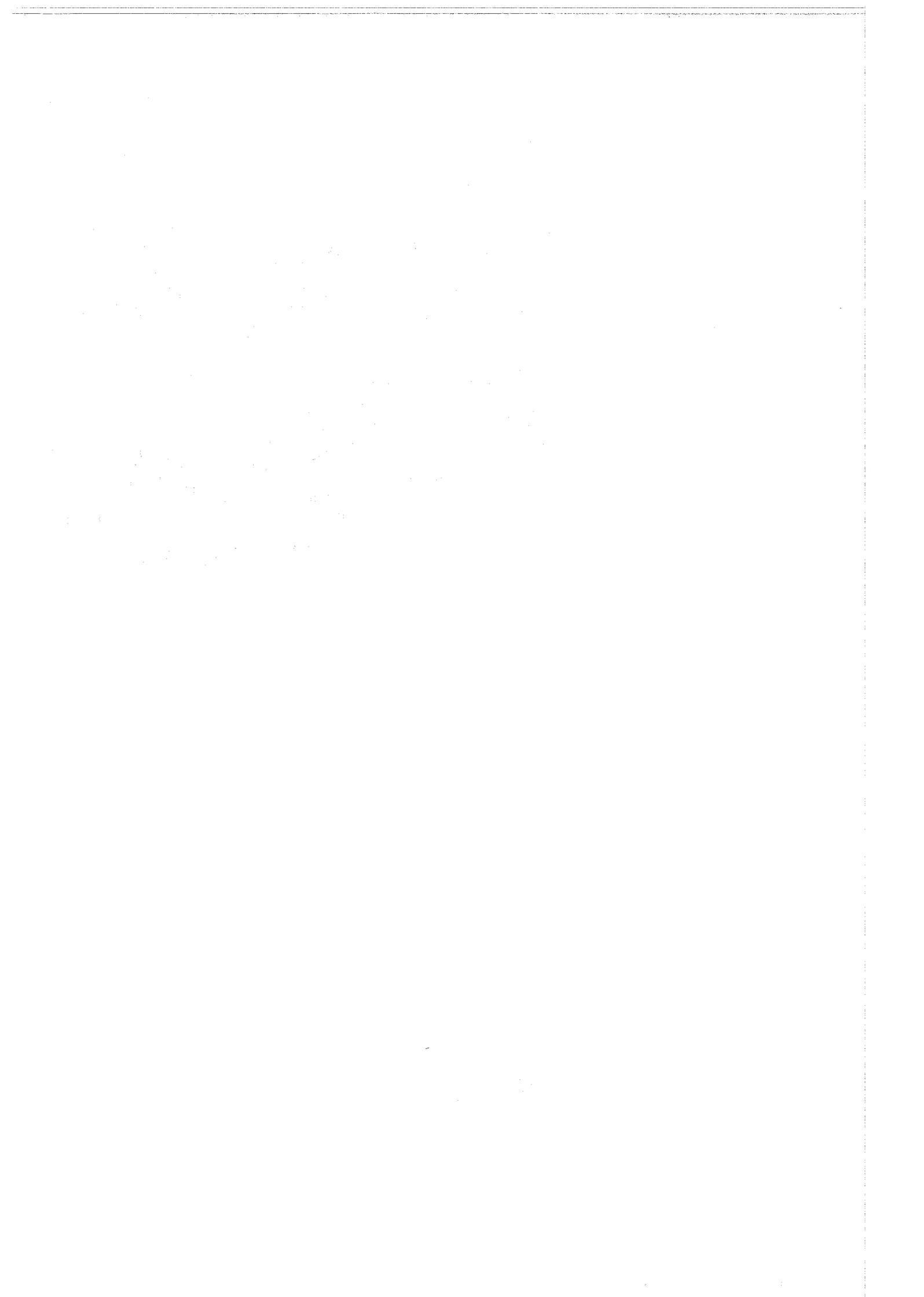
Abteilung Strahlenschutz und Dekontamination

Thermolumineszenzdosimetrie
Stand und praktische Anwendungsmöglichkeiten

R. Maushart, E. Piesch



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE



R. MAUSHART und
E. PIESCH, Karlsruhe *)

Thermolumineszenzdosimetrie – Stand und praktische Anwendungsmöglichkeiten

Thermoluminescence-Dosimetry – Present Knowledge and Practical Applications

Die Personendosisüberwachung mit Filmplaketten ist weitgehend unbefriedigend. Einerseits ist der Dosisbereich begrenzt und stark energieabhängig, andererseits ist eine wesentliche Richtungsabhängigkeit zu beobachten. Ferner ist die Auswertung aufwändig und nur sehr grob quantitativ. Schließlich sind Filme nicht wieder verwendbar. Aus all diesen Gründen ist verständlich, daß man nach günstigeren Methoden zur Überwachung der Personendosis sucht. Ein erfolgversprechender, viel diskutierter Versuch ist die Ausnutzung der Thermolumineszenzerscheinung. Über den derzeitigen Stand der Entwicklung dieses Gebietes berichten die Autoren.

The use of film badges for checking the radiation to which personnel has been exposed is unsatisfactory because the range is rather limited and influenced by energy; furthermore, the results depend on the direction of the radiation. Evaluation of the results is rather expensive, time consuming and, in any case, not too accurate. Film badges cannot be re-used. Hence the search for more suitable methods continues. A promising and much discussed method depends on thermoluminescence. The authors report on the state of development.

Dosimétrie par thermoluminescence – Position actuelle et possibilités d'applications

Le contrôle dosimétrique sur films est pour de nombreuses raisons peu satisfaisant. D'un côté le domaine d'utilisation est limité et dépend fortement de l'énergie, d'un autre côté on observe une dépendance notable avec la direction d'irradiation. En plus le dispositif est coûteux et n'est que très approximativement quantitatif. Enfin les films ne sont plus réutilisables. Pour toutes ces raisons on est à la recherche de méthodes plus appropriées pour résoudre ce problème. Une méthode très discutée mais qui semble prometteuse consiste en l'emploi des phénomènes de thermoluminescence. Les auteurs font le point sur la question.

1. Einführung

Über die Eigenschaft von Mineralien, beim Erhitzen Fluoreszenzlicht auszusenden, wurde schon in den zwanziger Jahren berichtet [1]. Diese natürliche Thermolumineszenz wird durch radioaktive Spureneinlagerungen hervorgerufen, die hauptsächlich aus Uran und seinen Folgeprodukten bestehen. Aus dieser Erscheinung ergeben sich interessante geologische Anwendungen der Thermolumineszenz [2].

Die ersten Versuche, Thermolumineszenz zur Dosimetrie von Kernstrahlung einzusetzen, liegen etwa 15 Jahre zurück. Ihre Ergebnisse waren im Hinblick auf eine Routineanwendung im Strahlenschutz zunächst wenig ermutigend. Das anfänglich bevorzugt untersuchte Lithiumfluorid zeigte ein derart komplexes Verhalten und eine so schlechte Reproduzierbarkeit der Werte, daß man bald zu Aluminiumoxyd und zu manganaktiviertem Kalziumsulfat überging. Das Aluminiumoxyd erwies sich jedoch als für die meisten Anwendungen zu unempfindlich, das Kalziumsulfat hatte ein erhebliches Fading, so daß die praktischen Anwendungsmöglichkeiten gering blieben.

Erst nach mehreren Jahren gelang es, in manganaktiviertem Kalziumfluorid eine thermolumineszente Substanz mit befriedigenden dosimetrischen Eigenschaften zu finden [3]. Sporadische Lumineszenz durch mechanische Einflüsse oder durch die atmosphärischen Gase zwingt allerdings dazu, das

Kalziumfluorid nur eingeschmolzen im Vakuum oder unter Schutzgas zu verwenden, wodurch die technische Ausführung von Dosimetern weitgehend festgelegt wird [4].

Im Laufe der weiteren Entwicklung hat man gelernt, auch das Verhalten von LiF besser zu beherrschen. Der entscheidende Fortschritt kam durch die Einlagerung des Pulvers in Polyäthylen oder Teflon [5].

An weiteren thermolumineszierenden Materialien, deren Eignung zur Dosimetrie zur Zeit untersucht wird, sind Lithiumborat [6], terbiumaktiviertes Glas [7], Al_2O_3 als Rubin [54] und eine ganze Reihe von Karbonaten [8] zu nennen.

Die leichte Erhältlichkeit aller dieser Substanzen und die relativ einfache Meßtechnik fordert zu manchmal recht raschen Untersuchungen geradezu heraus, so daß an ungewöhnlich vielen Stellen an der Entwicklung der Thermolumineszenz gearbeitet wird und eine ständig wachsende Zahl von Veröffentlichungen sowohl über die Eigenschaften als auch über einzelne Anwendungen existiert. Dabei kommt es häufig vor, daß sich Ergebnisse widersprechen oder nicht reproduziert werden können, da die Reinheit der Ausgangssubstanzen, die Kristallkonfiguration und die thermische und

*) Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Strahlenmeßdienst

mechanische Vorgeschichte, die bei den Versuchen eine erhebliche Rolle spielen, oft nur schwer oder gar nicht mit genügender Genauigkeit kontrolliert werden können.

Der folgende Aufsatz beschränkt sich daher auf die Beschreibung kommerziell angebotener Dosimetersysteme zum Routinegebrauch, auf ihre Anwendungsmöglichkeiten und auf die besonderen Umstände, die bei heutigem Stand der Technik auf diesem Gebiet beachtet werden müssen, um die Thermolumineszenzdosimetrie zu einem sinnvollen und zufriedenstellenden Einsatz zu bringen.

2. Die Methode der Thermolumineszenzdosimetrie

Wenn ein thermolumineszentes Material bei normaler Temperatur einer ionisierenden Strahlung ausgesetzt wird, dann setzt die Strahlungsabsorption Elektronen bzw. Elektronenfehlstellen frei, die zu Störstellen im Kristallgitter des Festkörpers diffundieren und dort eingefangen werden. Bei Energiezufuhr durch Erhitzen gelangen sie jedoch wieder über das Leitfähigkeitsband unter Lichtaussendung in den stabileren Energiezustand zurück.

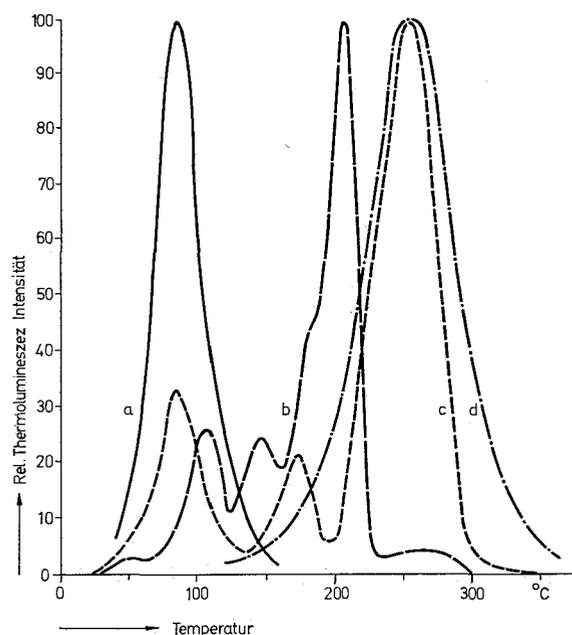


Abb. 1 Glühkurven verschiedener Thermolumineszenz-Materialien, auf gleiche Maximalintensität normiert [26]: a) $\text{CaSO}_4:\text{Mn}$, Erhitzungsrate $6^\circ \text{C}/\text{min}$ – b) LiF (TLD-100), Erhitzungsrate $20^\circ \text{C}/\text{min}$ – c) CaF_2 , Erhitzungsrate $60^\circ \text{C}/\text{min}$ – d) $\text{CaF}_2:\text{Mn}$, Erhitzungsrate $20^\circ \text{C}/\text{min}$

Wenn der Verlauf der Lichtintensität während der Temperaturerhöhung gemessen und als Funktion der Temperatur aufgetragen wird, dann nennt man die resultierende Kurve eine „Glüh-Kurve“ (glow curve). Die Glühkurve zeigt ein oder mehrere Maxima, deren relative Amplituden bei konstanter Erhitzungsrate in etwa die relative Anzahl der eingefangenen Elektronen in den verschiedenen Fehlstellenarten wiedergeben. Größere Erhitzungsraten ergeben größere Peak-Amplituden und die Maxima verschieben sich zu höheren Temperaturen. Wenn man jedoch die Lichtintensität über der Zeit aufträgt, dann sind die Flächen unter den Peaks, d. h. die Lichtsummen, konstant. Zur Ermittlung der absorbierten Dosis kann man entweder die gesamte emittierte Lichtsumme oder nur Teile der Glühkurve oder auch die Höhe von einem oder mehreren der Peaks auswerten. Wenn die Peakhöhe benutzt wird, muß die Erhitzungsrate genügend reproduzierbar sein, um eine Verschiebung der Peaks zu vermeiden.

Eine gleichmäßige Erhitzungsrate über die ganze Glühkurve ist jedoch im allgemeinen nicht notwendig.

Abb. 1 zeigt die Glühkurven für die am häufigsten verwendeten Thermolumineszenzmaterialien (CaF_2 natur, $\text{CaF}_2:\text{Mn}$, LiF , CaSO_4) [4, 9–12]. Das emittierte Lumineszenzlicht liegt je nach den Thermolumineszenzmaterialien im Wellenlängenbereich zwischen 3700 und 5000 Å. Glühpeaks bei 100 bis 150°C zeigen ein signifikantes Fading bei normalen Temperaturverhältnissen, während Hochtemperaturpeaks bei 200 bis 300°C eine stabile Meßwertspeicherung ergeben.

Die Erhitzung des Thermolumineszenzmaterials erfolgt im Auswertegerät über eine direkte bzw. indirekte Wärmeübertragung durch einen Metalldraht (z. B. im Glasrohr eingeschmolzen), durch eine Metallplatte (Widerstandserhitzung bei LiF -Teflonplatten) oder durch eine Erhitzungspfanne (für LiF -Pulver) in Verbindung mit einem Thermoelement. In der praktischen Auswertung ist die scheinbare Temperatur, bei der ein Glühpeak erscheint, oft sehr verschieden und hängt außer von der Erhitzungsrate auch von dem thermischen Kontakt zwischen dem Heizelement und dem Lumineszenzmaterial und von thermischen Strahlungsverlusten durch das Lumineszenzmaterial ab [13].

Zwischen Dosimeter und Photomultiplier befinden sich optische Filter zur Diskriminierung von Infrarotlicht gegenüber dem betreffenden TL-Licht. Ein digitaler Anzeigeteil oder ein Schreiber ermöglichen die Registrierung der Lichtintensität in Abhängigkeit von der Zeit oder in Abhängigkeit von der Temperatur, die Anzeige der Peakhöhe oder der insgesamt integrierten Lichtmenge. Tab. 1 ergibt eine Zusammenstellung verschiedener kommerzieller Auswertegeräte für Thermolumineszenzdosimeter [14].

Es liegt, wie aus dem bisher Gesagten hervorgeht, in der Methode der Thermolumineszenzmessung begründet, daß – im Gegensatz zu anderen akkumulierenden Festkörperdosimetern wie z. B. den Radiophotolumineszenzdosimetern – die durch Bestrahlung erzeugten metastabilen Leuchtzentren beim Auswertevorgang allgemein zerstört werden. Das bedeutet, daß nur eine einmalige, nicht wiederholbare Ablesung der absorbierten Dosis möglich ist. Für viele Anwendungen besteht jedoch der Wunsch, einerseits eine Messung zu Kontroll- oder sonstigen Zwecken wiederholen zu können, andererseits trotz Zwischenablesungen die Dosis über einen längeren Zeitraum zu akkumulieren. Die trivialste Art, dieser Schwierigkeit Herr zu werden, ist die, zwei gleichartige Dosimeter zu kombinieren, von denen normalerweise nur jeweils das eine Dosimeter ausgewertet wird. Darüberhinaus bieten sich zwei Methoden zur Mehrfachauswertung an. Man kann entweder durch gezieltes unvollständiges Ausheizen der Dosimeter nur die Glühpeaks bei niedrigerer Temperatur „abrufen“, wobei jeweils nur ein Teil der in den Glühpeaks höherer Temperatur gespeicherten Information verlorengeht [10] oder man kann sich im Falle von natürlichem Kalziumfluorid der Methode der lichtinduzierten Thermolumineszenzanregung bedienen (siehe Abschnitt 3.12).

3. Eigenschaften und technische Ausführung von TL-Dosimetern (Tab. 2)

3.1 CaF_2 - Dosimeter

Kalziumfluorid ist die in kommerziellen Dosimetern am häufigsten benutzte TL-Substanz. CaF_2 zeigt jedoch recht starke Energieabhängigkeit der Dosisanzeige, die bei 40 keV etwa um den Faktor 17 größer ist als bei 1,2 MeV. Die Dosimeter müssen daher in der kommerziellen Ausführung mit zusätzlichen Kompensationsfiltern aus Blei oder Zinn

Tabelle 1: Kommerzielle Thermolumineszenzdosimeter-Auswertegeräte (nach [14])

	Hersteller	Typenbezeichnung	Hauptanwendungsgebiet	TL-Material	Meßbereich (R)	Ablesung
1	Controls for Radiation, Cambridge/USA	TLD Model 5000 TLD Model 5100	biol.-med. Anwend., Personendosimetrie Anwend.	LiF LiF	0,01 – 10 ⁵ 0,01 – 10 ⁵	digital. digital
2	Edgerton, Germeshausen and Grier, Santa Barbara/USA	TL-2B TL-2C ?	Laboratorium Laboratorium Militär	CaF ₂ CaF ₂ CaF ₂	0,005 – 5 × 10 ³ 0,05 – 10 ⁴ 0,005 – 10 ⁵	Glühkurvenschreiber Glühkurvenschreiber digital
3	Harshaw Chemical Corp., Cleveland/USA	TLD Model 2000	biol.-med. Anwend., Personendosimetrie	LiF	0,01 – 10 ⁴	digital Glühkurvenschreiber
4	Madison Research, Middleton/USA	E-IV	biol.-med. Anwend., Personendosimetrie	LiF	0,05 – 10 ⁵	Dekad. Zähler
5	M.B.L.E., Brüssel/Belgien	PNH 001 PNH 150 PNA 049 PNA 059	Militär Militär Laboratorium Laboratorium	CaF ₂ nat. CaF ₂ nat. CaF ₂ nat. LiF	1 – 10 ³ 0,03 – 10 ³ 0,05 – 10 ³ 0,01 – 10 ³	Zeigerinstrum. Zeigerinstrum. Zeigerinstrum. Zeigerinstrum.
6	Vacutronic, Dresden/DDR	Lumimeter II Lumivad VA-M-30	Laboratorium biol.-med. Anwendung	CaF ₂ LiF	1 – 10 ⁴ 1 – 10 ⁴	Dekad. Zähler Dekad. Zähler

versehen werden. Damit erzielt man ohne Schwierigkeiten ausreichende Energieunabhängigkeit oberhalb etwa 80 keV. Nach neueren Angaben der Firma M.B.L.E. *) wird mit perforierten Bleifiltern schon oberhalb 35 keV Energieunabhängigkeit innerhalb ± 30 % erreicht, wobei allerdings unterhalb 60 keV zusätzlich eine Richtungsabhängigkeit bis zum Faktor 2 vorhanden ist [15].

*) Manufacture Belge de Lampes et de Materiel Electronique S.A., Bruxelles

Die Reproduzierbarkeit einer Dosismessung ist bei CaF₂ gut; sie liegt bei verschiedenen Dosimetern innerhalb ± 9 %, bei demselben Dosimeter innerhalb ± 2 % [15, 16]. Die Dosisanzeige ist im ganzen interessierenden Meßbereich linear (Abb. 2).

Je nach der Art des verwendeten CaF₂ gibt es heute im wesentlichen zwei Systeme, deren Entwicklung abgeschlossen ist und die in Großserien für einen routinemäßigen Einsatz – bevorzugt zur Katastrophendosimetrie – benutzt werden.

Tabelle 2: Kommerzielle Thermolumineszenzdosimeter

Hersteller	Typenbezeichnung	TLD-Material	Dosimeterausführung	Dosisbereich	Anwendung
Controls for Radiation, Cambridge/USA	Con-Rad Type N Con-Rad Type 7 Micro Rod Disc	LiF (nat. Li) LiF (angr. Li-7) LiF-Teflon LiF-Teflon	Pulver; in Teflon- oder Polyäthylenkapseln verschiedener Größe Stäbchen Plättchen, in Plastikhüllen, kleb.	100 mR – 10 ⁴ R 10 mR – 10 ⁵ R 1 R – 10 ⁵ R 50 mR – 10 ⁵ R	Personendosim. Neutronendosim. in-vio Dosim. Finger- und Handdosimeter
Edgerton, Germeshausen and Grier, St. Barbara/Calif.	TL-12 TL-19 TL-21 TL-29 TL-22 TL-23 TL-33 TL-72	CaF ₂ :Mn CaF ₂ :Mn LiF (nat. Li) LiF (nat. Li) LiF (Li-6) LiF (Li-7) CaF ₂ :Mn CaF ₂ :Mn			
Harshaw Chemical Corp., Cleveland/USA	TLD-100 TLD-600 TLD-700	LiF LiF LiF	Pulver, gesinterte Plättchen	10 mR – 10 ⁴ R	klin. Dosimetrie Personendosim.
Madison Research, Middleton/USA	Type 16 Type 605	LiF			
M.B.L.E., Brüssel/Belgien	PNE 002 003, 007 PNP 008 PNE 010 PNE 016 PNE 017	CaF ₂ (nat.) LiF LiF (Li-6) LiF (Li-7)	Miniaturradioröhren mit verschiedenen Kompensationsfiltern	1 R – 1000 R 2 mR – 1000 R 0,1 mR – 1000 R	Personendosim.
				10 mR – 1000 R	

Man bedient sich entweder des synthetischen manganaktivierten $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ oder des natürlichen CaF_2 , die sich sowohl in der Zahl und Lage der Maxima der Glühkurve als auch in der Wellenlänge des ausgesandten Lichtes unterscheiden (ca. 5000 Å bei $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ und 3700 Å bei natürlichem CaF_2).

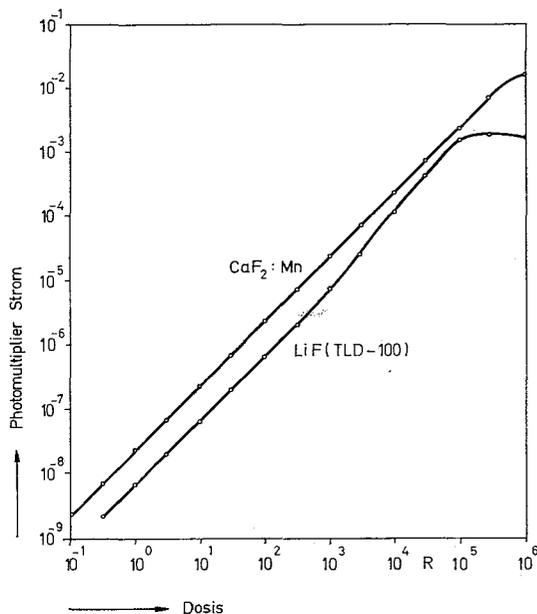


Abb. 2 Die relative Thermolumineszenzintensität (Glühpeak-Maximum) von $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ und LiF in Abhängigkeit von der aufgestrahlten Dosis (Co-60- γ -Strahlung) [23]

Daher zeigen beide Dosimeterarten auch einen unterschiedlichen Meßwertschwund, der beim $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ etwa 10 %/o, bei natürlichem CaF_2 etwa 3 %/o innerhalb 4 Wochen beträgt [17]. Mit kommerziellen Meßgeräten wird ein linearer Dosisbereich von einigen mR bis ca. 5000 R (M.B.L.E.) bzw. ca. 10^5 R (E.G.G.)* erreicht. Die untere Nachweisgrenze wird hierbei durch Infrarotemission des Dosimeters und durch den Dunkelstrom des Multipliers begrenzt.

3.11 Verwendung von synthetischem CaF_2 mit Manganaktivierung [4, 18, 19]

Der mit einem spiralförmigen Heizdraht in einer Miniaturröhre abgeschmolzene Phosphor wird als Stabdosimeter

mit einer speziellen Filterhalterung und einer Identifizierungsnummer getragen. Bei der automatischen Auswertung wird die Seriennummer des Dosimeters abgetastet und zusammen mit dem Meßwert innerhalb von 30 sec digital ausgedruckt. Gemessen wird die Fläche unter der Glühkurve, die nur einen einzigen Glühpeak bei ca. 260° C hat. Die Wiederverwendung des Dosimeters ist nach einer Wärmebehandlung während einer Stunde bei 350° C möglich (Hersteller: E.G.G. im Auftrag der US Navy).

3.12 Verwendung von natürlichem CaF_2 [12, 15, 20]

Der Phosphor ist in ähnlicher Weise auf einer zylindrischen, indirekt geheizten Kathode in Miniaturröhren aufgetragen. Der Hersteller, M.B.L.E., liefert verschiedene Energiekompensationsfilter in einem Kunststoffstabdosimeter (Abb. 3). Die Messung erfolgt über die Höhe des Glüh-Maximums des größten Peaks bei ca. 275° C, so daß keine Fading-Einflüsse infolge der niederen Temperaturpeaks bei ca. 70° C und 145° C auftreten.

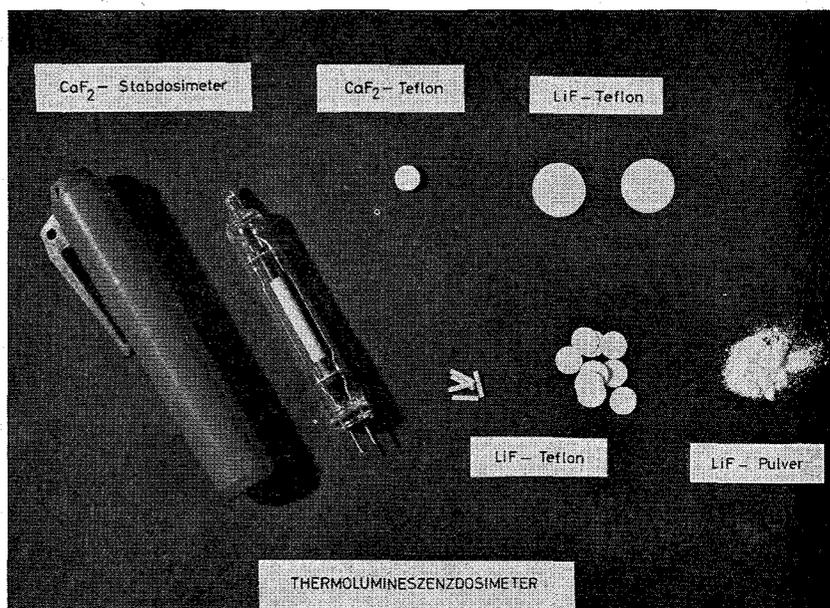
Natürliches CaF_2 zeigt bei noch höheren Temperaturen weitere Glühpeaks, die bei der normalen Ausheizung nicht abgefragt werden. Durch UV-Lichteinwirkung vor der Ausmessung können definierte Anteile der Elektronen von diesen tieferen Haftstellen in normale Energieniveaus gelangen und in den normalen Glüh-Maxima ausgemessen werden (lichtinduzierte Thermolumineszenz) [20]. Durch diesen „Memory-Effekt“ kann dieselbe Dosis wiederholt abgefragt oder eine bei verschiedenen Bestrahlungen akkumulierte Dosis gemessen werden, deren Teildosenbeträge durch die normale Auswertung bereits einzeln abgefragt wurden. Dieses Dosimeter wird in Belgien und Frankreich für den zivilen Bevölkerungsschutz bzw. für das Militär eingesetzt [21].

3.2 LiF-Dosimeter [10, 11, 22, 25]

LiF zählt wegen folgender physikalischer Eigenschaften zu den interessantesten Festkörperdosimetern:

- Die Aussendung eines Fluoreszenzlichtes mit relativ kleiner Wellenlänge (etwa 4000 Å) im Vergleich zu $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ (etwa 5000 Å) ermöglicht bessere Diskriminierung gegenüber Wärmeausstrahlung auch ohne optische Filter.
- Die annähernd energieunabhängige Dosisanzeige pro Röntgen reicht wegen der Zusammensetzung aus Elementen niedriger Ordnungszahl auch schon ohne zusätzliche Filterung bis herab zu Quantenenergien von 10 keV: Die

Abb. 3 Ausführungen verschiedener Thermolumineszenz-Dosimeter



*) Edgerton, Gärmeshausen and Grier, St. Barbara, Calif.

- maximale Überempfindlichkeit bei 10 keV beträgt etwa Faktor 1,3 im Vergleich zur Empfindlichkeit bei 1,2 MeV.
- Der Meßbereich von ca. 20 mR bis einige 1000 R ist ausreichend groß.
- Das Fading ist erträglich (5 % pro Jahr [11]; 10-15 % pro 3 Wochen [34]).
- LiF läßt sich in verschiedener Zusammensetzung und Form verwenden, z. B. als Kristall, in Pulverform, in gepreßten Pulverwürfeln oder Pulver verarbeitet zu verschiedenen Formen bzw. mit verschiedenen Zusätzen (z. B. mit Teflon oder anderen wärmebeständigen Bindemitteln als Scheibchen, Abb. 3).

Dem steht aber als Nachteil nicht nur die Abweichung der Anzeige vom dosislinearen Bereich bei größeren Dosen oberhalb einiger 100 R (Supralinearität) (Abb. 2) und Solarisation bei 10^5 R (25), sondern auch die Erhöhung der Dosisempfindlichkeit nach Bestrahlungen mit hohen Dosen ($\approx 10^5$ R) bis zum Faktor 6 gegenüber.

Außerdem wird LiF von verschiedenen Herstellern mit unterschiedlichen Glühkurven und unterschiedlicher Dosisempfindlichkeit und Dosislinearität angeboten. Man findet sogar häufig ungleiche dosimetrische Eigenschaften von Dosimeter zu Dosimeter der gleichen Lieferung sowie Veränderungen bei demselben Dosimeter nach mehrmaligem Ausmessen und Wärmebehandlungen [26].

Schließlich stört bei LiF-Pulver das Auftreten verschiedener Fremdthermolumineszenzeffekte (Einflüsse von Luft oder Tribolumineszenz), die eine Dosis bis zu 1 R simulieren können [11, 27]. Die untere Dosisnachweisgrenze von 10 mR wird daher nur mit speziellen Techniken erzielt, nämlich durch Ausmessung und Regenerierung des Pulvers in N_2 -Atmosphäre [25, 28] oder durch Einkapselung in Glas – unter Verlust der Energieunabhängigkeit [10] – oder durch Verwendung von LiF-Kristallen [29].

Die Erprobung geeigneter Dosimeterausgangsmaterialien und die Entwicklung hitzebeständiger Dosimeter sowie von Auswertegeräten für Pulver-, Stäbchen- oder Plättchendosimeter wurden in den letzten fünf Jahren gleichzeitig von vielen Laboratorien und Herstellern intensiv verfolgt. Diese Entwicklung ist trotz gewisser annehmbarer Teillösungen noch nicht abgeschlossen. In der praktischen Routinedosimetrie wird neben LiF-Kristallen zusammen mit einer speziellen Kombination von Auswerte-Kalibriergerät hauptsächlich LiF in Teflon zur Teilkörperdosisbestimmung eingesetzt. In der medizinischen Dosimetrie wird LiF in Pulverform für Hochdosismessungen verwendet. Wegen der notwendigen Umfüllung des Pulvers von der Verpackung in die Pfanne der Auswertearratur ist die Messung etwas umständlich. Es werden deshalb auch mit 10 bis 30 mg LiF gefüllte Miniatur-Glasröhrchen kommerziell angeboten, wobei die Glasfassung die günstigen Eigenschaften der Energieunabhängigkeit jedoch verschlechtert. Die Verwendung von LiF-Dosimetern in Großserien erfordert jedenfalls immer noch einen erheblichen Aufwand an Kalibrierungen und Kontrollbestrahlungen, um zu reproduzierbaren Meßergebnissen zu gelangen.

Im einzelnen versucht man die genannten Schwierigkeiten auf folgende Weise zu überwinden:

Unterschiedliche Dosisempfindlichkeit zwischen Dosimetern derselben Charge
Von der Herstellerseite versucht man, die LiF-Kristalle so feinkörnig wie möglich zu zermahlen, um ein gleichmäßig ge-

mischtes Pulver als Dosimeterausgangsprodukt verwenden zu können. Bei der Ausmessung bietet sich die Möglichkeit einer Kombination von Auswertegerät und β -Kalibrierstandard. Das Dosimeter wird nach der Auswertung in der Meßapparatur durch ein β -Präparat auf eine definierte Dosis bestrahlt. Aus der zweiten Auswertung wird die Dosisempfindlichkeit des Kristalls unter den jeweiligen Auswerteverhältnissen ermittelt [29].

Änderung der Dosisempfindlichkeit in Abhängigkeit von dem Betrag der eingestrahelten Dosis, der Anzahl der Auswertungen und der thermischen Vorbehandlung, d. h. der Vorgeschichte des einzelnen Dosimeters

Für eine Meßreihe werden etwa 10 % der Dosimeter derselben Charge und Vorgeschichte auf eine definierte Dosis bestrahlt. Sie müssen bei der Ausmessung der Charge zur Ermittlung der jeweiligen Dosisempfindlichkeit zwischen den anderen Dosimetern ausgemessen werden. Als Referenzdosimeter müssen innerhalb verschiedener Meßreihen abwechselnd andere Dosimeter aus dieser Charge verwendet werden. Auch beim Ausheizvorgang selbst machen sich verschiedene störende Einflüsse bemerkbar. Man beobachtet Änderungen des Wärmekontaktes und der Erhitzungstemperatur durch unvollständige oder unreproduzierbare Auflage des Dosimeters in der Heizpfanne sowie Korrosion bzw. mechanische Verformung des Heizdrahtes nach 50 bis 100 Auswertungen, so daß auf zwischenzeitlich eingelegte Referenzmessungen mit kalibrierten Dosimetern auch innerhalb einer Meßreihe nicht verzichtet werden kann.

Meßwertlöschung

Eine Temperaturbehandlung von 400° C während 1,5 Stunden und anschließend von 80° C während 24 Stunden führt durch vollständige Löschung der Niedertemperaturpeaks in der Glühkurve am besten zu einer Wiederverwendbarkeit des Dosimeters [11, 30].

LiF in Teflon läßt sich jedoch nur auf 330° C erhitzen. Manche Schwierigkeiten ergeben sich durch zu geringes Ausheizen des Dosimeters. Zwar wird bei kleinen Dosen Reproduzierbarkeit durch eine Wärmebehandlung von 330° C in einer Stunde und anschließend bei 80° C in 24 Stunden erzielt [31]. Dosen von 300 R und mehr führen jedoch zu einer Erhöhung des Nulleffektes und zu 10 % Vergrößerung der Dosisempfindlichkeit. In diesem Fall ist nur eine 5 bis 10-malige Auswertung möglich [5]. Man hofft auf günstige Ergebnisse neuerer Arbeiten, die eine Verarbeitung von LiF-Pulver in hitzebeständigeren gummiähnlichen Produkten zum Ziel haben [32].

Um den Einfluß des Kurzzeitfadings von ca. 10 % innerhalb 24 Stunden nach Exposition auf das Ergebnis zu vermeiden, kann unmittelbar vor der Ausmessung eine kurze Wärmebehandlung bei 100° C 10 min lang (Ausheizen des Niedertemperatur-Glühpeaks) vorgenommen werden. Zur Unterdrückung dieser Niedertemperatur-Glühpeaks kann aber auch die Auswertemethode entsprechend gewählt werden. Die Integration des Fluoreszenzlichtes beginnt dann beispielsweise erst 4,5 sec nach Beginn des Ausheizens, oder man mißt anstelle der Fläche unter der Glühkurve nur die Höhe des Hochtemperaturpeaks [33-35].

Die in der Literatur angegebenen physikalischen Eigenschaften von LiF sind teilweise widersprüchlich, da sie durch die Art und Zusammensetzung des vorliegenden LiF, durch das Aus-

heiz- und Auswertesystem im zugrundegelegten Meßgerät, durch die Wärmebehandlungsmethode vor und nach der Bestrahlung und durch den Dosisbereich stark beeinflusst werden können.

Je nach Ausgangssubstanz muß gegenüber den üblichen Werten immer mit einer Verschiebung der Glühpeaks und dem Wellenlängenbereich des ausgesandten Lichtes, sowie einer Änderung der Energieabhängigkeit der Dosisanzeige infolge Zusätzen höherer Ordnungszahl gerechnet werden.

Für die weitere Entwicklung richtungsweisend sind die Verarbeitung von LiF in hitzebeständigen Kunststoffen, sowie die Erprobung neuerer Thermolumineszenzstoffe mit LiF als Basis, die beispielsweise durch Aktivierung mit geringen Mengen anderer Stoffe Glühpeaks bei bestimmten Temperaturen und damit günstigere dosimetrische Eigenschaften ergeben [36, 37]. Ein mit 5 % LiCl aktiviertes LiF-Dosimeter zeigt zwei ausgeprägte Glüh-Maxima bei 130° C und 230° C [38]. Routineauswertungen könnten auf den ersten Glühpeak bezogen werden, während der zweite Peak als Meßwertspeicher trotz Zwischenauswertungen eine akkumulierte Langzeitdosis aufsummierten kann.

4. Praktische Anwendung der Thermolumineszenzdosimetrie und bisherige Erfahrungen.

4.1 Personendosimetrie im Strahlenschutz
Anders als bei Phosphatglasdosimetern liegen über den routinemäßigen Einsatz von TL-Dosimetern innerhalb der Strahlenschutzüberwachung nur relativ wenige Veröffentlichungen vor. Zahlreiche Laboratorien sind zur Zeit jedoch dabei, Erfahrungen über den Einsatz von TL-Dosimetern und deren Meßgenauigkeit, besonders im Vergleich zu den bisher üblichen Film dosimetern, zu gewinnen. Außerdem werden LiF-Teflondosimeter, da sie leicht, dünn, biegsam und in beliebigen Formen hergestellt werden können, zur Ermittlung einer Finger- bzw. Handdosis in zunehmendem Umfang eingesetzt.

Diese praktische Art der Messung, die mit energiekompenzierten Dosimeterarten kaum durchführbar ist, dürfte in Zukunft wahrscheinlich der Schwerpunkt der Anwendung von TL-Dosimetern im Strahlenschutz sein.

Direkte Vergleichsmessungen von LiF-Kristallen mit Film dosimetern wurden erstmals in Form einer Testbestrahlung in der Universität von Wisconsin mit γ -Strahlung, Röntgenstrahlung und Strahlungsgemischen durchgeführt [29]. Auch bei Strahlungsgemischen lagen die TLD-Auswertungen innerhalb $\pm 30\%$ zur eingestrahelten Dosis und zeigten eine kleinere Streuung als die Meßergebnisse der Film dosimeter.

Eine Vergleichsmessung innerhalb der Routinedosimetrie wird zur Zeit von US Naval Research Laboratory mit zwei TL-Dosimetern (natürliches CaF_2 von M.B.L.E. und CaF_2 :Mn von E.G.G.), einer selbstablesbaren Ionisationskammer und einem Film dosimeter durchgeführt. Beide TL-Dosimeter zeigten im Zwischenergebnis [17] eine bessere Übereinstimmung mit der tatsächlichen Dosis als das Film dosimeter. Für die routinemäßige Personendosimetrie erwies es sich jedoch als nachteilig, daß die TL-Dosimeter – wahrscheinlich teilweise durch Eigenaktivität der Glaskapselung – eine Nulldosis von 21 bis 24 mR pro Monat anzeigten.

Ein ähnlicher Vergleich zwischen einfachen TL-Dosimetern (LiF-Pulver in Polyäthylenkapseln) und Film dosimetern wurden im Savannah River Laboratory durchgeführt. Die Übereinstimmung der TLD-Ergebnisse zur tatsächlichen Dosis waren innerhalb $\pm 10\%$, während das Film dosimeter Abweichungen bis zum Faktor 2 und mehr zeigte [37].

Bei der National Reactor Testing Station, Idaho Falls, wird das Film dosimeter mit LiF-Teflonscheiben ausgerüstet, die routinemäßig ausgewertet werden [38].

Als Ersatz für die in der Praxis ungeeigneten Fingerringdosimeter wurde in England zunächst LiF-Pulver in kleinen Plastiktüten, die über die Fingerspitzen gestreift werden können, zur Ermittlung der Fingerdosis bei Arbeiten mit Reaktor Brennelementen benutzt [39, 40]. Eine Verbesserung dieser Meßmethode bestand in der Verwendung von LiF-Teflondosimetern, die in lichtdichter Verpackung durch eine etwa 7 mg/cm² dicke Polyäthylenfolie abgedeckt sind (gleichzeitige äquivalente Messung der Personendosis von β - und γ -Strahlung) [5, 41]. Als Beispiel für die Notwendigkeit solcher Dosimeter wird über einen Bestrahlungsfall berichtet [41], bei dem durch das Halten einer 1-mg-Radiumnadel am Daumen eine Maximaldosis von 560 mR festgestellt wurde, während Fingerring-, Film- und normale Personendosimeter weniger als 2 % dieser Maximalteilkörperdosis anzeigten.

Einen Nachteil für eine breitere Anwendung der Fingerdosimeter zur Teilkörperdosismessung im Strahlenschutz dürften neben der etwas umständlichen Meßmethode und dem schnellen Verbrauch der Dosimeter vor allem die relativ hohen Kosten für die Anschaffung der TL-Dosimeter und des Auswertegerätes darstellen.

4.2 Weitere Anwendungen

Besonders kann LiF in der Umgebungsüberwachung zur akkumulierten Langzeitdosisbestimmung [42, 51] eingesetzt werden. Eine besonders interessante Anwendung ergab sich im Zusammenhang mit den Untersuchungen über die Auswirkung der Kernbombenexplosion in Hiroshima und Nagasaki. Dort wurde nach 20 Jahren die damalige Höhe und Verteilung der γ -Dosis bestimmt, indem man die Thermolumineszenz von Dachziegeln auswertete, deren Lage zum Explosionszentrum bekannt war. Die Kalibrierung erfolgte nachträglich durch erneute Bestrahlung des Probenmaterials. Dosen bis herab zu 100 R ließen sich auf diese Weise noch feststellen [52].

Wegen seiner geringen Größe und des geringen Gewichts wurde LiF als Dosimetersubstanz im US Raumfahrtprogramm bei Satellitenflügen und als Personendosimeter bei Gemini-Flügen bevorzugt [43, 44].

Zur Neutronendosimetrie werden LiF-Pulver mit angereicherterem Li-7 (TLD-700) oder Li-6 (TLD-600) kommerziell hergestellt. TLD-700 ist unempfindlich gegenüber thermischen Neutronen (ca. 0,5 % der Empfindlichkeit von TLD-100) und kann zur Messung der γ -Dosis in einem gemischten Strahlungsfeld verwendet werden. Zur Trennung der Dosisanteile, die in einem gemischten Strahlungsfeld von thermischen Neutronen und von γ -Strahlung herrühren, wird die Meßwertdifferenz von TLD-600 und TLD-700 benutzt. Spezielle Arbeiten gelten dem Nachweis schneller Neutronen über eine Körpermoderierung [45] oder in einer Moderatoranordnung [46] und der Personendosimetrie [47].

Versuche zur Dosismessung von energiereichen Elektronen und Quanten sind mit verschiedenen TL-Dosimetern durchgeführt worden. Vor allem die medizinische und radiobiologische Anwendung von LiF-Pulver zu Hochdosismessungen am lebenden Objekt wird immer mehr an Bedeutung zunehmen. Hierbei interessiert sowohl eine Oberflächendosis als eine in-vivo-Messung [48].

Mit LiF-Dosimetern wurden erstmalig an einem Alderson-Menschphantom die mittlere Energiedosis in verschiedenen Organen (Knochenmark, Gonaden, Auge usw.) in Abhängigkeit von der Quantenenergie ermittelt [49].

Die Vorträge zweier internationaler Symposien [48, 50], die in den letzten Jahren auf dem Gebiet der Festkörperdosimetrie stattgefunden haben, geben zahlreiche Beispiele der Anwendung der TL-Dosimetrie. Sie lassen aber auch erkennen, wie intensiv auf diesem Gebiet noch gearbeitet wird. Die Entwicklung der TL-Dosimeter ist keineswegs abgeschlossen und dürfte in den nächsten Jahren weitere für die Praxis der Dosimetrie nützliche Ergebnisse bringen.

Literatur

- [1] F. W. WICK: Thermoluminescence of fluorites and calcites. *Phys. Rev.* 25, S. 588, 1925
- [2] F. DANIELS, C. A. BOYD, D. F. SAUNDERS: Thermoluminescence as a research tool. *Science* 117, S. 343, 1953
- [3] R. J. GINTHER, R. D. KIRK: The thermoluminescence of $\text{CaF}_2 \cdot \text{Mn}$. *J. Electrochem. Soc.* 104, S. 365, 1957
- [4] J. H. SCHULMAN, F. H. ATTIX, E. J. WEST, R. J. GINTHER: New thermoluminescent dosimeter. *Rev. Sci. Instr.* 31, S. 1263, 1960
- [5] B. E. BJÄRNGÅRD, R. C. McCALL, I. A. BERSTEIN: LiF-Teflon thermoluminescence dosimeters, in: *Luminescence Dosimetry*, CONF-650637, Washington 1967, S. 308
- [6] J. H. SCHULMAN, R. D. KIRK, E. J. WEST: Use of lithium borate for thermoluminescence dosimetry, in: *Luminescence Dosimetry*, Washington 1967, S. 113
- [7] R. J. GINTHER: Terbium-activated thermoluminescent glass for dosimetry, in: *Luminescence Dosimetry*, Washington 1967, S. 118
- [8] E. E. ANGINO: Thermoluminescence of some carbonates, thorium dioxide and barium titanate, in: *Luminescence Dosimetry*, Washington 1967, S. 158
- [9] D. A. PATTERSON, H. FRIEDMAN: Milliroentgen dosimetry with thermoluminescence. *J. Opt. Soc. Am.* 47, S. 1136, 1957
- [10] J. H. SCHULMAN, F. H. ATTIX, E. J. WEST, R. J. GINTHER: Thermoluminescence methods in personnel dosimetry. *OECD Symp. Person. Dosimetry Techn.*, Madrid 1963, S. 319
- [11] J. R. CAMERON, D. ZIMMERMANN, G. N. KENNEY, R. BUCH, R. BLAND, R. GRANT: Thermoluminescent radiation dosimetry utilizing LiF. *Health Physics* 10, S. 25, 1964
- [12] R. SCHAYES, M. LORTHIOIR, M. LHEUREUX: La dosimetrie par thermoluminescence. *Rev. MBL* 6, S. 33, 1963
- [13] J. F. CARTER, R. D. BIRKHOFF, D. R. NELSON: Importance of thermal equilibrium in thermoluminescence measurements. *Health Physics* 10, S. 539, 1964
- [14] Z. SPURNY: Thermoluminescence Dosimeters, in: *Technical Guidebook on Personnel Dosimeter Systems for External Radiation Exposures*, IAEA Wien
- [15] MBL's new thermoluminescent dosimetry programme. *MBLE* 1967
- [16] K. BECKER: Die gegenwärtige Situation in der militärischen und Zivilschutz-Personendosimetrie. *Zivilschutz* 30, S. 56, 1966
- [17] T. L. JOHNSON, F. H. ATTIX: NRL Test and evaluation report 69, 1967
- [18] J. H. SCHULMAN, R. J. GINTHER, R. D. KIRK, H. S. GOULART: Thermoluminescent dosimeter has storage stability, linearity. *Nucleonics* 18, No. 3, S. 92, 1960
- [19] E. F. BLASE, R. E. LAGERQUIST, R. C. PALMER, D. F. RUTLAND: A thermoluminescent personnel dosimetry system. *Health Physics* 9, S. 888, 1963
- [20] C. BROOKE, R. SCHAYES: Recent developments in thermoluminescent dosimetry, in: *Solid State and Chemical Radiation Dosimetry*, IAEA Wien 1967
- [21] J. R. CAMERON, N. SUNTHARALINGAM: The role of thermoluminescent dosimeters in personnel dosimetry. *ENEA Symp. Radiat. Dose Measurem.*, Stockholm 1967
- [22] J. R. CAMERON, F. DANIELS, H. JOHNSON, G. N. KENNEY: Radiation dosimeter utilizing the thermoluminescence of lithium fluoride. *Science* 134, S. 333, 1961
- [23] M. J. MARRONE, F. H. ATTIX: Damage effects in $\text{CaF}_2 \cdot \text{Mn}$ and LiF thermoluminescent dosimeters. *Health Physics* 10, S. 431, 1964
- [24] C. KARZMARK, J. WHITE, J. F. FOWLER: Lithium fluoride thermoluminescence dosimetry. *Phys. Med. Biol.* 9, S. 273, 1964
- [25] R. C. McCALL, R. C. FIX: A sensitive LiF dosimeter for routine β and γ personnel monitoring. *Health Physics* 10, S. 602, 1964
- [26] J. F. FOWLER, F. H. ATTIX: Solid state integrating dosimeters, in: *Radiation Dosimetry*, Vol. II, New York 1966, S. 241
- [27] V. SVARCER, J. F. FOWLER: Spurious thermoluminescence and tribothermoluminescence in LiF dosimetry powder, in: *Luminescence Dosimetry*, Washington 1967, S. 227
- [28] M. J. AITKEN, J. REID, M. S. TITE, S. J. FLEMING: Quenching of spurious thermoluminescence by nitrogen, in: *Luminescence Dosimetry*, Washington 1967, S. 236
- [29] N. SUNTHARALINGAM, J. R. CAMERON: A comparison of TLD and film for personnel dosimetry. *Health Physics* 12, S. 1595, 1966
- [30] D. W. ZIMMERMANN, C. R. RHYNER, J. W. CAMERON: Thermal annealing effects on the thermoluminescence of LiF. *Health Physics* 12, S. 525, 1966
- [31] G. A. M. WEBB: Thermal annealing effects on the thermoluminescence of LiF-Teflon disc dosimeters. *Health Physics* 13, S. 814, 1967
- [32] W. J. HARTIN: An improved LiF dosimetry system. *Health Physics* 12, S. 1181, 1966 (abstract)
- [33] J. A. ANDERSON, A. FELTMAN, M. M. D. WILLIAMS: *Nature* No. 1, 1967, S. 61
- [34] C. J. KARZMARK, J. F. FOWLER, J. T. WHITE: Problems of reader design and measurement error in lithium fluoride thermoluminescent dosimetry. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 17, S. 161, 1966
- [35] G. A. M. WEBB: Fading in thermoluminescent lithium fluoride after irradiation with low doses. *Brit. J. Appl. Phys.* 18, S. 7, 1967
- [36] J. ROMAN, M. WOLSKA, J. WYSOPOLSKI, Z. URBANOWICZ: Thermoluminescent dosimeter with memory effect. Report No. CLOR 59/D, Warschau 1966
- [37] R. M. HALL, C. N. WRIGHT: First Topical Sym. Person. Radiat. Dosim. *Health Physics Society* 1967
- [38] J. ROMAN, M. WOLSKA, J. WYKOPOLSKI, Z. URBANOWICZ: Thermoluminescent dosimeter with memory effect. Report No. CLOR 56/D, Warschau 1966
- [39] T. F. JONES: Symp. Dosim. Irradiat. from Extern. Sources, Paris 1964
- [40] K. F. G. PERRY, E. GEORGE: An experimental system for thermoluminescent dosimetry. Report AEEW-R 411, 1965
- [41] B. E. BJÄRNGÅRD, D. JONES: A new technique for finger and hand dosimetry using solid thermoluminescent LiF Teflon dosimeters. *AED-Conf.* 193-17, 1966
- [42] R. M. HALL, J. P. LE ROCCA: Thermoluminescent dosimeter for environmental monitoring. *Health Physics* 12, S. 851, 1966
- [43] F. H. ATTIX, E. J. WEST, W. E. PRICE: NRL Report No. 5938, 1963
- [44] R. G. RICHMOND, W. G. DAVIS, J. C. LILL: Gemini Dosimetry results. *Health Physics* 12, S. 1166, 1966 (abstract)
- [45] V. MEJDÄHL: Thermoluminescence dosimetry in fast neutron personnel monitoring employing body-moderation. *Symp. Neutron Monit. Radiolog. Protect.* IAEA Wien 1966
- [46] D. NACHTIGALL: Private Mitteilung
- [47] C. M. UNRUH, W. V. BAUMGARTNER, L. F. KOCHER, L. W. BRACKENBUSH, G. W. R. ENDRES: Personnel neutron dosimeter developments. *BNWL-SA-537*, 1966
- [48] Proceedings of the IAEA Symp. on Solid State and Chem. Radiat. Dosimetry in Medicine and Biology, Wien 1966
- [49] A. R. JONES: Proposed calibration factors for various dosimeters at different energies. *Health Physics* 12, S. 663, 1966
- [50] Proceedings of the Intern. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford 1965
- [51] T. L. CULLEN: Use of thermoluminescent dosimeter for measurement of external radiation in Guarapari, Brazil. *Health Physics* 12, 1966, S. 970
- [52] Y. ICHIKAWA, T. HIGASHIMURA, T. SIDEI: Thermoluminescence dosimetry of γ rays from atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics* 12, 1966, S. 395
- [53] T. NIEWIADOMSKI: Doping methods and some thermoluminescent and dosimetric properties of LiF:Ca, Ag and $\text{CaF}_2 \cdot \text{Mn}$. *Nukleonika* XII, 1967, S. 281
- [54] C. R. PHILBRICK, W. G. BUCKMANN, N. UNDERWOOD: Ruby as a thermoluminescent radiation dosimeter. *Health Physics* 13, 1967, S. 798