
Thermolumineszenz von Kernstrahlung im Modellexperiment

Von Robert J. Schwankner und Markus Eiswirth

1 Thermolumineszenz

Der Effekt der radiogen induzierten Thermolumineszenz ist ein seit langem beschriebenes Phänomen; das „Entfachen“ von Luminophoren beim Erwärmen wurde gegen Ende des letzten Jahrhunderts ausführlich dokumentiert (*Lenard, Becquerel, Curie, Wiedemann*) [1–4].

Durch den Zerfall radioaktiver Inhaltsstoffe (^{40}K Kalium, sowie Glieder der $4n$ - und $(4n+2)$ -Zerfallsreihen) in Tonmaterialien konnte die Thermolumineszenz neuerdings auch in der Archäometrie als der grundlegende Effekt einer neuen Datierungsmethode für Keramik mit Erfolg ausgewertet werden [5].

2 Dosimetrie von Kern- und Neutronenstrahlung

Bei der Absorption von Kern- bzw. Neutronenstrahlung werden in den entsprechenden Thermoluminophoren Elektronen vom Grundzustand in Haft-Niveaus (traps) gehoben, aus denen eine direkte Rekombination mit dem im Valenzband (VB) verbliebenen positiven Loch (Defektelektron) einen nicht erlaubten Prozeß darstellt.

Erst durch die Zufuhr von Wärme oder Licht erfolgt eine Anhebung in die Unterkante des Leitungsbands (CB), von wo aus die Rate (r) der radiativen Rekombi-

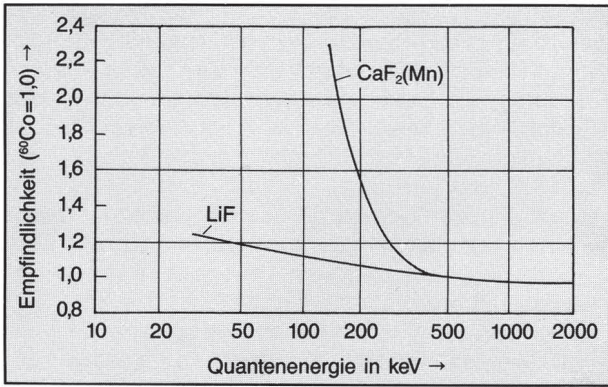


Abb. 1 Energieabhängigkeit von Thermoluminophoren [9] (bezogen auf ^{60}Co Cobalt-Strahlung: 1,12; 1,33 MeV-Linien)

nation — temperaturunabhängig — endliche Werte annimmt [6].

$$r \sim \exp(-\epsilon/kT)$$

r: radiative Rekombinationsrate

ϵ : Haftstellentiefe

k: Boltzmann-Konstante, $1,381 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$

T: absolute Temperatur

— Dieser Effekt wurde an einer Reihe von Materialien im Screening-Verfahren studiert, um geeignete integrierende Strahlungsdosimeter zu finden. Abb. 1 zeigt die Energieabhängigkeit von zwei typischen Thermo-Luminophoren in Abhängigkeit von der Quantenenergie der Erregungsstrahlung. Derartige Luminophor-Kristalle dienen z. B. in Form eines Fingerring-Dosimeters (Abb. 2a) zur integrierenden Ermittlung der Teilkörperdosis¹⁾ beruflich strahlen-exponierter Personen. Zur Dosimetrie und Strahlenexposition vergleiche [7, 8].

¹⁾ etwa beim Arbeiten in einer Glove-box

Abb. 2a Fingerring-Dosimeter auf Basis der Thermolumineszenz (Photo: GSF); b Auswerteanordnung für die Thermolumineszenz-Dosimetrie

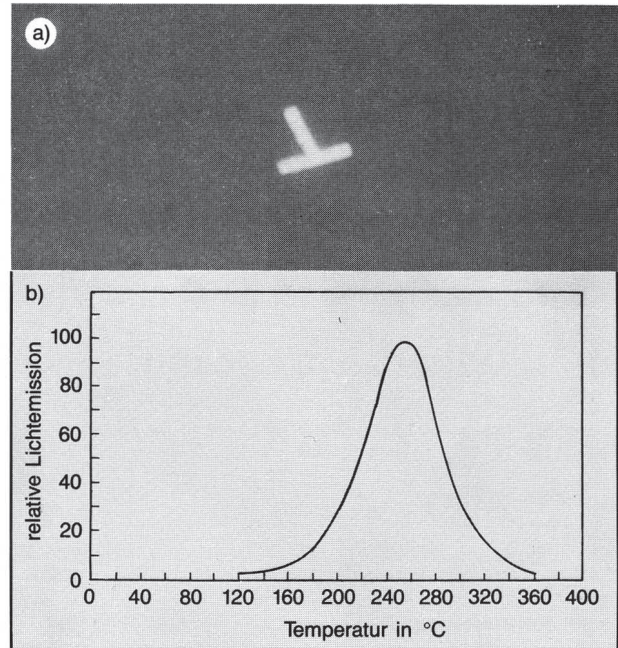
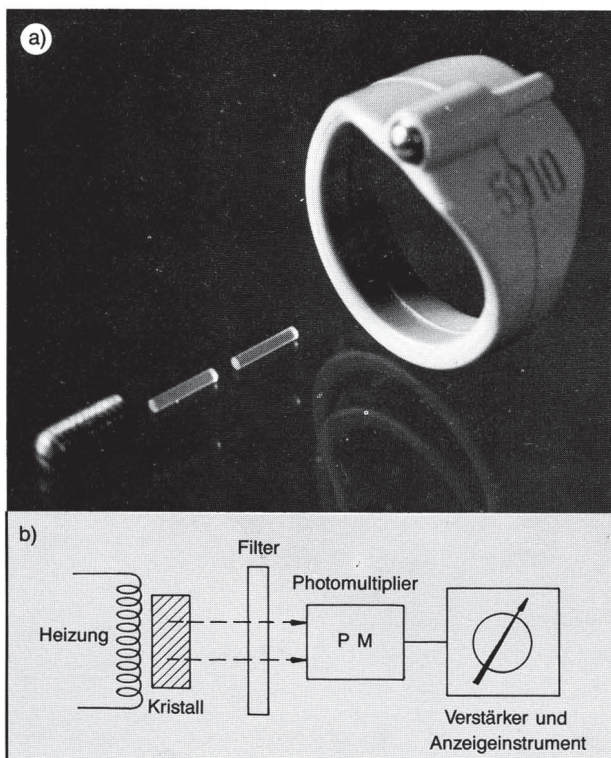


Abb. 3a $\text{CaF}_2(\text{Mn})$ bei der Aufnahme der Glow-Kurve („Ausleuchten“) nach vorheriger Exposition (Energiedosis $\approx 1 \text{ Gy}$); b Glow-Kurve eines $\text{CaF}_2(\text{Mn})$ -Dosimeters

Das exponierte Kristalldosimeter (Abb. 2b) wird im Zuge der routinemäßigen Auswertung ausgeheizt und die im sichtbaren Spektralbereich abgegebene Lichtmenge (Abb. 3a) als Glow-Kurve registriert (Abb. 3a, b).

Dabei wird die gesamte gespeicherte Information gelöscht und das Dosimeter steht prinzipiell wieder für einen neuen Einsatz zur Verfügung.

Ein Hauptproblem bei der Einführung der Thermolumineszenz-Dosimetrie stellt das „thermische Bleichen“ (fading) der exponierten Luminophore dar, was sich je nach Material bei Raumtemperatur mehr oder minder bemerkbar macht und somit den Selbstablauf des Dosimeters bestimmt [8, 9].

Heute verwendet man Dosimeterkristalle, bei welchen dieser Effekt keine ausgeprägte Rolle spielt, so z. B. Mangan-dotiertes Calciumfluorid ($\text{CaF}_2(\text{Mn})$) und/oder Magnesium-dotiertes Lithiumfluorid ($\text{LiF}(\text{Mg})$). Bei letzterem ist die Dosisanzeige, also das Integral der Aufheizkurve von 10^{-6} — 10^{-3} Gy^2) linear.

^6Li Lithium mit der natürlichen Isotopenhäufigkeit 7,35% (^7Li Lithium: 92,5%) besitzt gegenüber thermischen Neutronen eine hohe Empfindlichkeit, weshalb bezüglich ^6Li Lithium angereichertes Lithiumfluorid (LiF) zur kombinierten Dosimetrie in Gamma-Neutronen-Feldern herangezogen wird.³⁾

3 Modellexperimente

Als Modell-Luminophor zur Demonstration der Lumineszenz-Dosimetrie eignet sich der II/VI-Photohalbleiter $\text{ZnS}(\text{Cu})$, welcher, in einer Kunststoffmatrix eingebettet, verfügbar ist⁴⁾ [6].

²⁾ 1 Gy (Gray) = 1 J/kg; Einheit der Energiedosis (1 cGy = 1 rad)
³⁾ ^6Li Lithium wird heute großtechnisch für die Darstellung von Tritium gewonnen, insbesondere im Hinblick auf die Entwicklung der Kernfusion

⁴⁾ A. Gutekunst KG, 7220 Schweningen

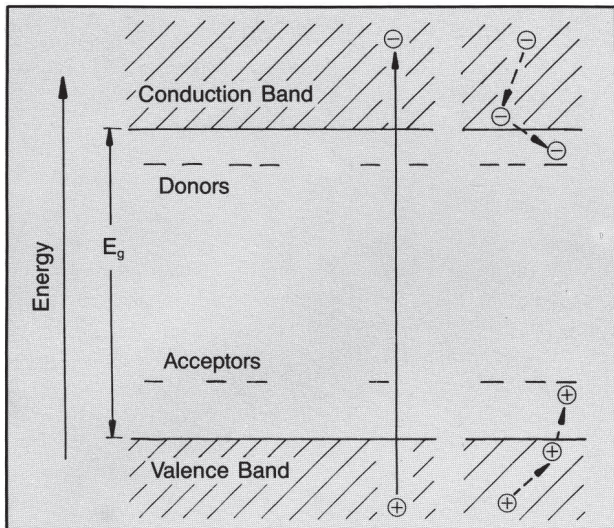


Abb. 4 Anregung, Relaxation und Rekombinationsprozesse in einem vereinfachten Energiediagramm für Halbleiter; von links nach rechts:

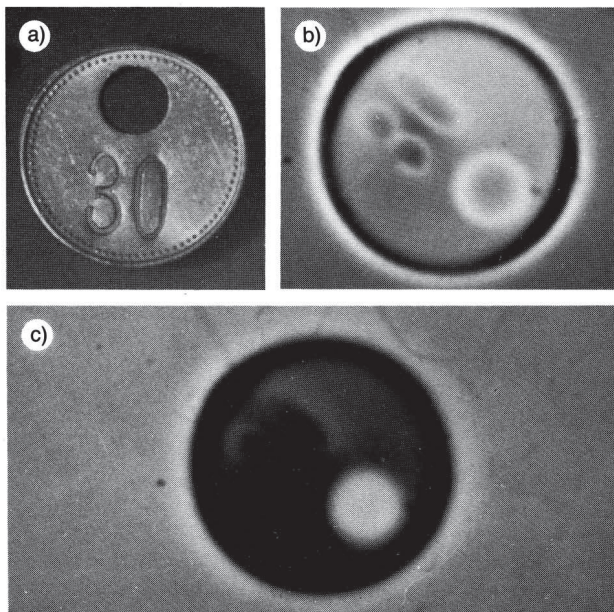
- Bildung eines Elektron/Loch-Paars (VB → CB-Übergang)
- Relaxation eines Elektrons (Lochs) zum unteren (oberen) Rand des CB (VB), das durch einen ionisierten Donor (Akzeptor) eingefangen wird

Ein Zinksulfid-Schirm der beschriebenen Art wird mit Tages- oder Weißlicht bestrahlt, wobei Elektronen ins Leitungsband (CB) angeregt werden (Abb. 5a). (Die Bandlücke (E_g) beträgt beim reinen Zinksulfid 3,80 eV; Abb. 4.)

Von dort erfolgt strahlungslose Relaxation der Elektronen, bzw. Defektelektronen in die entsprechenden Donor- (Haftstellen) und Akzeptorniveaus.

Bei Raumtemperatur ist bei Abdunklung deutlich eine gleichmäßige grüne ($h\nu \ll E_g$) Lumineszenz zu beobachten. Diese entspricht dem oben besprochenen thermischen Bleichen („Ablaufen“) des Kristalldosimeters. Durch Abkühlen, etwa mit Eiswasser oder mit flüssigem Stickstoff, kann die Intensität des thermischen Bleichens stark herabgesetzt werden.

Abb. 5a Lokales Ausheizen („Entfachen“): Die Prägemarke wird nach Erwärmung im Wasserbad auf den ZnS(Cu)-Schirm rückseitig für 30 s aufgepreßt, **b** 15 s nach dem Aufpreßen (siehe Text), **c** 150 s nach dem Aufpreßen (siehe Text)



Bei lokaler Erhitzung, etwa durch rückseitiges Aufpreßen eines im Wasserbad erwärmten Gegenstandes (Abb. 5a), zeigt sich unmittelbar eine starke Aufhellung durch die thermisch induzierte erhöhte radiative Rekombinationsrate (Abb. 5b). Nach einiger Zeit sind schließlich alle Haftstellen (traps) lokal entleert (Abb. 5c).

Die aufgrund begrenzter Wärmeleitung und gegebener Wärmekapazität im Lumineszenzschirm nicht erhellte Umgebung zeigt weiterhin das von der Raumtemperatur bestimmte thermische Bleichen.

Das Modelldosimeter ist nunmehr gelöscht und steht wieder zur Verfügung.

Wir hoffen einmal mehr [3] gezeigt zu haben [9, 10], daß die Wechselwirkungen Kernstrahlung/Absorber auch bei begrenztem experimentellen Aufwand Einblick in physiko-chemische Elementarprozesse und deren anwendungstechnische Realisierung gestatten.

Literatur

- [1] P. Lenard, Über Ausleuchtung und Tilgung der Phosphore durch Licht. Carl Winters, Heidelberg 1917
- [2] A. S. Marfunin, Spectroscopy, Luminescence and Radiation Centers in Minerals. Springer, Berlin—Heidelberg—New York 1979
- [3] R. J. Schwankner, Radiochemie-Praktikum. — Einführung in das kern- und radiochemische Grundpraktikum (Universitäts-taschenbücher, UTB 1068). Schöningh, Paderborn—München—Wien—Zürich 1980
- [4] N. Riehl, Einführung in die Lumineszenz. Thieme, München 1971
- [5] G. A. Wagner und H. Bischof, Echtheitstests mittels Thermolumineszenz an Altchinesischen Keramikplastiken. Archäologie und Naturwissenschaft 1, 20—48 (1977)
- [6] R. J. Schwankner, M. Eiswirth und H. Venghaus, Luminescent Processes Elucidated by Simple Experiments on ZnS. J. Chem. Educ. 58, 806—809 (1981)
- vgl. auch R. J. Schwankner und M. Eiswirth, Laser-Projektionschemie (Praxis Schriftenreihe Chemie, Band 43), Aulis, Köln 1985
- [7] W. Löster, Dosimetrie und Strahlenexposition. Praxis (Chemie) 34, 7—15 (1985)
- [8] M. Frank und W. Stolz, Festkörperdosimetrie ionisierender Strahlung. Leipzig 1969
- [9] R. J. Schwankner und M. Eiswirth, Themen zur Festkörperchemie I— Modellvorstellungen und Anwendungsspekte (Praxis Schriftenreihe Chemie, Band 41). Aulis, Köln 1984
- [10] R. J. Schwankner, Laseranwendungen in der Experimentalchemie — ein Praktikum. Hanser, München—Wien 1978

Anschriften der Verfasser:

Dr. Robert J. Schwankner, Dipl.-Chem., Konservator am Deutschen Museum, Museumsinsel 1, 8000 München 22; Dr. Markus Eiswirth, Dipl.-Chem., Institut für Physikalische Chemie, Sophienstr. 11, 8000 München 2