

VERSUCHSBERICHT ZU

V11 – THERMOLUMINESZENZ

Group Ma-A-07

Alexander Neuwirth(a_neuw01@uni-muenster.de)

Alex Oster(a_oste16@uni-muenster.de)

durchgeführt am 04.11.2019
betreut von Katharina Garner

4. Dezember 2019

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Theorie	1
2.1. Thermolumineszenz	1
2.2. Strahlungsdosimetrie	6
3. Methoden	9
4. Ergebnisse und Diskussion	14
4.1. Beobachtungen und Analyse	14
4.1.1. Beobachtungen	14
4.1.2. Untergrundmessung	14
4.1.3. Heizkurve	15
4.1.4. Peakbestimmung	16
4.1.5. Dosisbestimmung	17
4.1.6. Bestrahlungszeit	18
4.1.7. Wellenlängenspektrum	20
4.2. Diskussion	23
5. Schlussfolgerung	24
A. Anhang	25
A.1. Unsicherheiten	25
Literatur	26

1. Einleitung

Dieser Versuchsbericht befasst sich mit der Untersuchung von Thermolumineszenz. Dafür werden die Glühkurven verschiedener geeigneter Kristalle aufgenommen und mit Referenzdaten verglichen. Damit eine solche Messung stattfinden kann, muss den Kristallen beispielsweise durch ionisierende Strahlung Energie zugeführt werden. Aus den Referenzdaten wird für diesen Versuch dann die Dosis bestimmt, mit der die unbekannten Proben bestrahlt wurden. Weiterhin werden die Wellenlängen des Lumineszenzlichts bestimmt, welches während des Erhitzen eines Kristalls emittiert wird. Daraus lässt sich fortführend die Energie der Rekombinationszentren bestimmen. Ebenso wird die Zeit der Bestrahlung im Rahmen dieser Untersuchung bestimmt.

2. Theorie

Bevor der Versuchsaufbau beschrieben wird, soll zunächst die Physik betrachtet werden, welche dem Versuch zu Grunde liegt. Dafür behandelt dieser Abschnitt Thermolumineszenz und Dosimetrieverfahren.

2.1. Thermolumineszenz

Alle Körper, deren Temperatur T über dem absoluten Nullpunkt liegt, emittieren elektromagnetische Strahlung (Schwarzkörperstrahlung). Die Wellenlänge λ dieser Strahlung erhöht sich mit steigender Temperatur und kann ein Maximum bei $\lambda = 500 \text{ nm}$ erreichen. Dies liegt im Bereich des sichtbaren Lichts. Ab einer Temperatur von $T = 798 \text{ K}$, dem sogenannten Draper-Punkt, emittieren nahezu alle Festkörper Licht im sichtbaren Bereich (also ab ca. 380 nm).

Über das Planck'sche Strahlungsgesetz lässt sich die Intensität u dieser Strahlung in Abhängigkeit der Wellenlänge λ und Temperatur T beschreiben:

$$u(\lambda, T) = \frac{8\pi hc\lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda k_{\text{B}} T}\right) - 1}, \quad (2.1)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit c , dem Planck'schen Wirkungsquantum h und der Boltzmann-Konstante k_{B} .

Wird unter dem Draper-Punkt sichtbares Licht emittiert, so spricht man von Lumineszenz. Lumineszenz kann durch äußere Einflüsse erzwungen werden. Dabei wird unterschieden, wie der Festkörper angeregt wird. Diese Untersuchung beschränkt sich dabei auf die sogenannte Thermolumineszenz, die wie der Name impliziert, durch thermische Anregung des Festkörpers charakterisiert wird. Beschreiben lässt sich der Vorgang durch Absorption der von außen zugeführten Energie, was dazu führt, dass der Körper aus dem Grundzustand in einen energetisch höheren versetzt wird. Da dieser Zustand sich nicht im Gleichgewicht befindet, fällt er nach einer gewissen Zeit zurück in den Grundzustand und emittiert Licht, dessen Energie der Differenz der Energieniveaus entspricht. Auch hier wird nach den Zeitskalen differenziert, die ein Körper braucht, um zurück in den Grundzustand zu fallen. Vorgänge welche kürzer dauern als 10 ns bezeichnet man als Fluoreszenz und diejenigen die länger dauern als Phosphoreszenz. Unter 100 μ s werden letztere weiterhin als kurzlebig gekennzeichnet und von Minuten bis zu Jahren als langlebig.

Weiterhin lässt sich Prozess der Thermolumineszenz zeitlich in drei Phasen unterteilen. Als erstes wird Energie absorbiert, was dazu führt, dass die Festkörperatome bzw. deren Elektronen angeregte Zustände einnehmen. Eine übliche Quelle der absorbierten Energie folgt aus dem Einfall ionisierender/radioaktiver Strahlung. Die zweite Phase wird dadurch beschrieben, dass eine Relaxation der angeregten Zustände stattfindet. Diese erfolgt jedoch nicht zurück in den Grundzustand sondern in höhere Energieniveaus, die sogenannten Haftstellen. Letztere folgen dadurch, dass kein realer Festkörper eine Gitterstruktur ohne Fehlstellen (auch Defektzentren genannt) besitzt. An dieser Stelle ist zu erwähnen, dass dieser Übergang strahlungsfrei erfolgt. Hier wird die freiwerdende Energie statt durch Emission eines Photons an das Gitter des Kristalls abgegeben. Anders ist dies in der letzten Phase. Durch Hinzufügen thermischer Energie (z. B. durch Erhitzung des Kristalls) werden die Elektronen aus den Haftstellen gelöst, sodass die Abregung in den Grundzustand von dort stattfinden kann. Bei diesem Prozess wird die Energiedifferenz durch Emission von Licht frei.

Eine anschaulichere Darstellung folgt aus dem Bändermodell für nicht elektrisch leitende Festkörper (große Bandlücke). Um die Thermolumineszenz genauer betrachten zu können, ist es notwendig, dass eine hohe Haftstellenkonzentration vorliegt. Dies kann durch gezielte Dotierung erfolgen, da Fremdatome ebenfalls als Fehlstellen eines periodischen

Gitters agieren können.

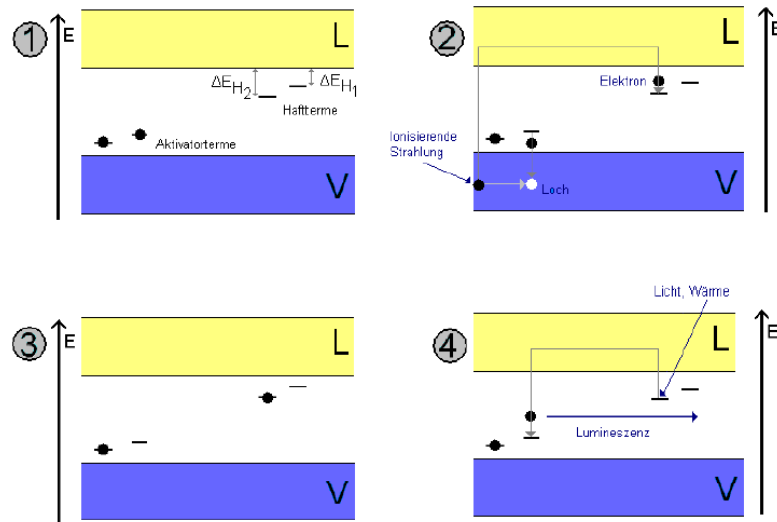


Abbildung 1: Thermolumineszenz im Bändermodell:

- (1) Grundzustand
- (2) Anregung durch ionisierende Strahlung und Rekombination
- (3) Unbesetzte Aktivatorterme und besetzte Haftterme
- (4) Thermische Anregung und zurückfallen in Grundzustand.[1]

Abb. 1 stellt das das Bändermodell während des Prozesses der Thermolumineszenz dar. Dabei entsprechen (2) bis (4) den zuvor beschriebenen Phasen, in die sich der übergeordnete Prozess der Thermolumineszenz gliedern lässt. In jeder der vier Teilabbildungen sind Leitungs- und Valenzband dargestellt. Elektronen im Leitungsband können sich frei im Kristall bewegen, wohingegen diejenigen im Valenzband gebunden sind. In dem Bereich zwischen den beiden Bändern, der Bandlücke, liegen keine Energieniveaus vor. Nur durch Fehlstellen können weitere Niveaus dort eingebracht werden. Bei diesen wird jedoch unterschieden, ob es sich um solche nahe des Leitungsband (Haftterm) oder welche nahe dem Valenzband (Aktivatorterm) handelt.

Unabhängig davon liegt für Elektronen eine Fermi-Verteilung für ihre Energien vor, da es sich bei ihnen um Fermionen handelt. Der Grundzustand (1) liegt bei geringen Temperaturen, wie auch die Raumtemperatur, vor. In diesem Fall verhält sich diese Fermi-Verteilung wie eine Stufenfunktion. Dort liegen alle Elektronen im Valenzband und

den Aktivatortermen. Dementsprechend befinden sich keine Elektronen in den Haftstellen oder dem Leitungsband.

Mit (2) angefangen beginnt der Prozess der Thermolumineszenz. Die Anregung im Bändermodell lässt sich vereinfacht dadurch beschreiben, dass ein Elektron aus dem Valenzband Energie absorbiert und in das Leitungsband angehoben wird. An der Stelle, wo sich zuvor das Elektron befand, bleibt ein Elektronenloch (kurz: Loch) übrig. Diese Löcher stellen ein anziehendes Potenzial für Elektronen höherer Energieniveaus dar, weswegen solche in der Regel aus dem Leitungsband in die Löcher „fallen“ und sie wieder füllen (auch Rekombination genannt). Jedoch können auch Elektronen aus Aktivatortermen mit den Löchern rekombinieren, sodass keine freien Löcher für Elektronen aus dem Leitungsband vorliegen und diese deswegen frei beweglich im Leitungsband bleiben, vgl. (2).

Da die Haftterme energetisch günstiger liegen als die Zustände im Leitungsband, findet der strahlungsfreie Übergang in die Haftstellen nach einer gewissen Zeit statt. In (3) ist der Zustand dargestellt welcher vorliegt, nachdem alle Elektronen im Leitungsband entweder mit dem Valenzband rekombiniert haben oder in die Haftstellen übergegangen sind. Der Grund dafür, dass die Elektronen in den Haftstellen nicht mit den Aktivatortermen rekombinieren, ist die dafür zu hohe Bindungsenergie in den Haftstellen. Im nächsten Schritt, welcher für die Thermolumineszenz charakteristisch ist, wird thermische Energie hinzugefügt, um diese Bindungsenergie zu überwinden, sodass die Elektronen wieder in das Leitungsband angehoben werden. Von dort ist dann eine Rekombination mit den Aktivatortermen unter Emission des Lumineszenzlichts möglich, wie in (4) dargestellt. Je größer die Differenz zwischen Leitungsband und Haftterm (ΔE_H in Abbildung), desto fester die Bindung im Haftterm und folglich die Lebensdauer τ des Zustands dort. Letztere kann durch

$$\tau = \frac{1}{s} \exp\left(\frac{\Delta E_H}{k_B T}\right) \quad (2.2)$$

mit Sprungfaktor s und den zuvor genannten Größen dargestellt werden. Hier spricht man von einer Boltzmann-Statistik. Vergrößert man die Temperatur T , so wird der Exponent der Euler-Funktion kleiner und dementsprechend die Lebensdauer kürzer. Ebenso folgt, dass für höhere ΔE_H längere Lebensdauern vorliegen. Um die verschiedenen Energieniveaus zu ähnlich kurzen Zeiten für die Messung zu entleeren, muss also die

Temperatur schrittweise erhöht werden.

Zur Darstellung der Thermolumineszenz bieten sich Glühkurven an. Bei diesen wird die Intensität des Lumineszenzlichts in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen.

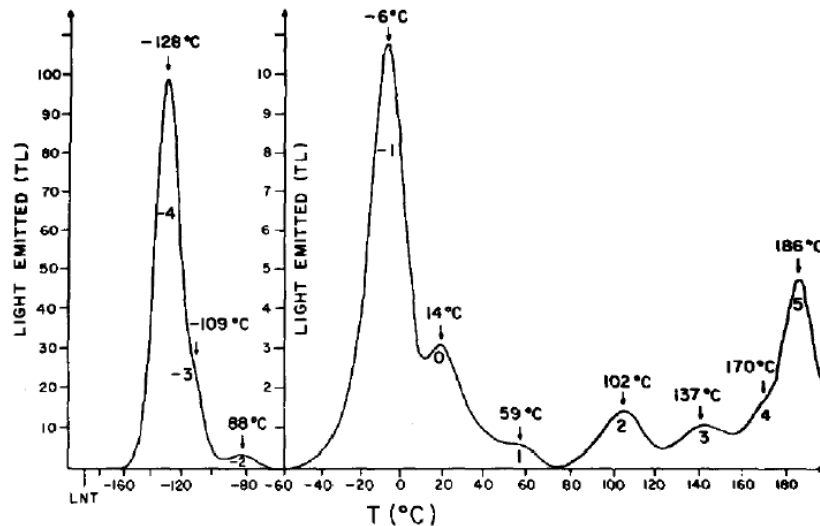


Abbildung 2: Darstellung einer Glühkurve eines LiF-Kristalls.[2]

Als Beispiel dient die in Abb. 2 dargestellte Glühkurve eines Lithiumfluorid-Kristalls, welcher vor Beginn der Messung auf -160 °C abgekühlt wurde. Dort zu erkennen sind zehn Peaks, von denen fünf oberhalb der Zimmertemperatur liegen. Für diese Untersuchung sind nur Letztere von Bedeutung, da auch LiF-Kristalle untersucht werden sollen. Anzumerken ist, dass von den fünf relevanten Peaks nur die thermisch höher gelegenen stabil sind, also deutlich höhere mittlere Lebensdauern besitzen. Peak Nr. 5 wird auch als Hauptpeak bei Thermolumineszenzmessungen bezeichnet, da er besonders ausgeprägt ist.

Dotiertes Lithiumfluorid bietet sich für solche Messung besonders an, da dort eine hohe Haftstellenkonzentration vorliegt, von denen einige thermisch und zeitlich stabil sind. Zudem liegen die Peaks weit genug auseinander, dass sie unterschieden werden können und der Hauptpeak liegt unter 250 °C , weswegen Störeffekte durch Wärmestrahlung vernachlässigt werden können.

Der Vorgang der Thermolumineszenz kann genutzt werden um die Dosis radioaktiver Strahlung zu messen. Aus der Fläche unter der Glühkurve, kann auf die Dosis geschlossen werden, worauf in dem folgenden Unterkapitel genauer eingegangen wird (ein weiterer Grund für LiF ist, dass der Zusammenhang dieser Größen über eine große Dosissskala dort linear ist). Als Dosimetrie bezeichnet man die Bestimmung einer Strahlungsdosis im Rahmen des Strahlenschutzes.

2.2. Strahlungsdosimetrie

Bei Strahlung kann es sich um unterschiedliche Typen handeln. Einerseits können Teilchenstrahlung, wie beim α - oder β -Zerfall, aber andererseits auch elektromagnetische Strahlung (γ -Zerfall) auftreten. Die Aktivität A einer Quelle ist eine Größe, welche unabhängig von der Strahlungsart ist und als Anzahl Zerfälle pro Sekunde definiert wird. Das Zerfallsgesetz folgt aus der Proportionalität zwischen der vorliegen Anzahl vorhandener radioaktiver Kerne N und der Aktivität:

$$A = \lambda N = -\frac{dN}{dt} \quad (2.3)$$

und durch Lösung der Differentialgleichung:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t}, \quad (2.4)$$

wobei $N(t)$ die Anzahl noch nicht zerfallener Kerne beschreibt, N_0 diejenige zum Zeitpunkt $t = 0$ und $\lambda = 1/\tau$ die Zerfallskonstante mit mittlerer Lebensdauer des Kerns τ . Einsetzen in (2.3) liefert dann für die Aktivität $A(t)$ zum Zeitpunkt t

$$A(t) = \underbrace{\lambda N_0}_{A_0} \cdot e^{-\lambda t} = A_0 \cdot e^{-\lambda t}. \quad (2.5)$$

Dann ist die Halbwertszeit $T_{1/2}$ als diejenige definiert, bei der die Aktivität die Hälfte ihres ursprünglichen Werts erreicht hat:

$$A(T_{1/2}) = A_0 \cdot e^{-\lambda T_{1/2}} = \frac{A_0}{2} \quad (2.6)$$

$$\Rightarrow T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} = \ln(2) \cdot \tau. \quad (2.7)$$

Anzumerken ist, dass die Einheit der Aktivität Becquerel (Bq) ist, was einem Zerfall pro Sekunde entspricht. Dies beschreibt jedoch nur, wie schnell ein Stoff zerfällt und nicht, wie gefährlich er ist. Dafür wird der Begriff „Dosis“ eingeführt.

Als Energiedosis D versteht man die pro infinitesimale Masseneinheit dm absorbierte Energie dE_D :

$$D = \frac{dE_D}{dm} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{dE_D}{dV}, \quad (2.8)$$

wobei E_D derjenigen Energie entspricht, welche die Strahlung vom Eintritt in den Körper bis zu dem Austritt abgibt. Das Differenzial über die Masse dm kann einfach durch die Dichte des Körpers ρ multipliziert mit dem Volumendifferenzial dV ersetzt werden. Es folgt für die Einheit der Dosis deswegen das Gray (Gy), was einer Energiedeposition von einem Joule pro Kilogramm Masse des bestrahlten Körpers entspricht.

Fortführend kann die Dosisleistung \dot{D} als Dosis pro Zeiteinheit definiert werden:

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt}. \quad (2.9)$$

Wird die Dosisleistung nur gering von der Luft abgeschwächt, so kann sie mit der Aktivität in einen linearen Zusammenhang gebracht werden:

$$\dot{D} = k \cdot \frac{A}{r^2}. \quad (2.10)$$

Dabei ist r der Abstand von der Strahlungsquelle und k eine spezifische Strahlungskonstante, welche abhängig von Strahlungsart und -energie ist. Für die verschiedenen Strahlungsarten treten unterschiedliche Wirkungsquerschnitte auf und die Energiedeposition pro Weglängeneinheit $\frac{dE}{dx}$ variiert. Deswegen wird die Äquivalentdosis H eingeführt,

welche um einen Strahlungsgewichtungsfaktor q proportional zu der Dosis ist:

$$H = q \cdot D \quad (2.11)$$

$$\text{und analog } \dot{H} = \frac{dH}{dt} = q \cdot \dot{D}. \quad (2.12)$$

Für H wird dann die Einheit Sievert (Sv) eingeführt. Die Strahlungsgewichtungsfaktoren sind nur für Neutronenstrahlen abhängig von der Energie. Eine Auflistung dieser kann z. B. [2] entnommen werden.

Im Folgenden wird die Äquivalentdosis gemeint, wenn von Dosis gesprochen wird.

Dosimeter sind Messsysteme, die zur Ermittlung einer Strahlungsdosis dienen. Thermolumineszenz kann genutzt werden um ein solches Messsystem zu betreiben. Dies nennt man dann Thermolumineszenzdosimetrie (TLD).

Hier wird ausgenutzt, dass bei größerer Dosis an eingestrahelter Energie ebenso mehr Haftterme besetzt werden und nach thermischer Anregung eine höhere Ausbeute an Lumineszenzlicht erhalten wird. Folglich werden mehr Photonen emittiert, wenn die Strahlungsdosis höher ist und die Photonen können über Photomultiplier (Photokathode + Dynoden) in einen proportionalen, messbaren Strom umgewandelt werden. Weiterhin folgt dadurch, dass die Dosis der Strahlung proportional zu der Fläche unter dem zugehörigen Peak der Glühkurve ist:

$$D \propto \int_{T_i}^{T_f} I \, dT' \quad (2.13)$$

mit Start- und Endtemperatur T_i bzw. T_f , bei denen sich der Peak von dem Untergrund abhebt bzw. wieder anpasst. Die Intensitätsverteilung eines Peaks kann aus einem vereinfachten Bändermodell, wo jeweils nur ein Aktivator- und Haftterm vorliegen, entnommen werden (Randall-Wilkins-Modell). Dort wird davon ausgegangen, dass die Wahrscheinlichkeit p , dass eine Elektron eine Haftstelle bei Temperatur T verlässt bei

$$p = \frac{1}{\tau} = s \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \quad (2.14)$$

liegt. Ausgegangen wird davon, dass die Anzahl der Haftstellen bei konstanter Temperatur

T über die Zeit t abnimmt und eine konstante Heizrate der Form $\beta = \frac{dT}{dt}$ vorliegt. Dann kann nach einigen weiteren Annahmen und Umformungen, die hier nicht weiter ausgeführt werden, auf folgende Intensitätsverteilung eines einzelnen Peaks geschlossen werden:

$$I(T) = I_M \exp\left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT}\right) \exp\left(\frac{E}{kT_M} \left(\alpha\left(\frac{E}{kT_M}\right) - \frac{T}{T_M} \exp\left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT}\right) \alpha\left(\frac{E}{kT}\right)\right)\right). \quad (2.15)$$

Hierbei sind E , I_M und T_M Parameter mit denen ein Programm, wie „GlowFit“ [3], eine Fitfunktion zu der Glühkurve bestimmen kann. Die Herleitung der Größe α ist [4] zu entnehmen. Mit der dadurch erhaltenen Intensitätsverteilung, kann dann auf die Dosis geschlossen werden.

3. Methoden

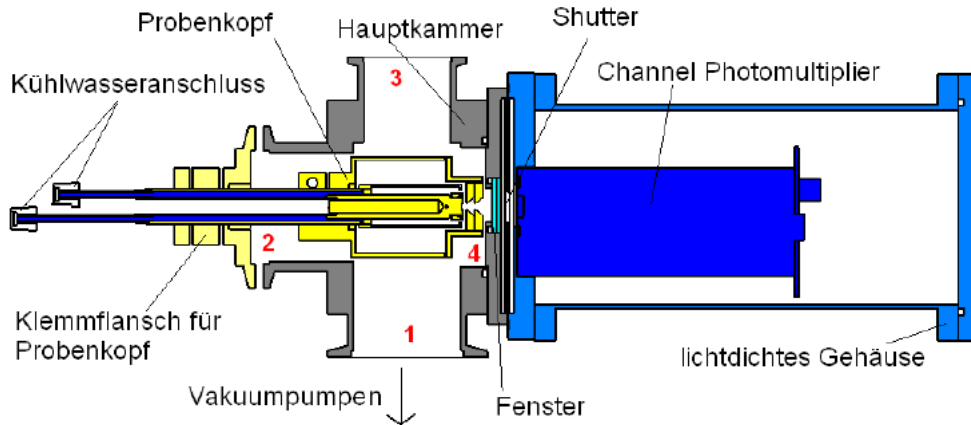


Abbildung 3: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus.[2]

Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 3 dargestellt. Dort zu erkennen ist, dass die Probenhalterung mitsamt Probe von der linken Seite in die Messkammer geführt wird. Dazu gehören weiterhin Kühlwasser und die Befestigung über den Klemmflansch. Von den vier Ein- bzw. Ausgängen, liegt die linke Seite bei Nummer Zwei. Direkt über dem Probenkopf, bei der Nummer Vier, liegt ein Channel Photomultiplier, welcher sich in einem lichtdichten Gehäuse befindet. Die Öffnung, welche erlaubt Licht zu dem Photomultiplier

durchzulassen, kann mit dem Shutter geschlossen werden. Um zu garantieren, dass nur Photonen aus der Thermolumineszenz den Photomultiplier erreichen werden zusätzlich Filter eingebaut. Es ist an dieser Stelle erneut anzumerken, dass die Detektion über den Photomultiplier verläuft. Dazu werden über den photoelektrischen Effekt an einer Photokathode Elektronen durch das Lumineszenzlicht gelöst. Diese werden dann entlang Dynoden beschleunigt, sodass über die dabei entstehenden Sekundärelektronen ein Strom proportional zu der Lichtintensität gemessen werden kann.

An Eingang Nummer Eins sind zwei Vakuumpumpen angeschlossen, welche dazu dienen die Hauptkammer zu evakuieren. Bei den Pumpen handelt es sich zum einen um eine Drehschieberpumpe und zum anderen um eine Turbopumpe. Da das Lumineszenzlicht an Gasmolekülen streuen kann, ist es für eine genaue Messung wichtig, dass Vakuum vorliegt. Weiterhin wird dadurch vermieden, dass Gasmoleküle erhitzt werden und den Messuntergrund verfälschen.

Neben dem in Abb. 3 dargestellten Aufbau liegt ein analoger vor, der sich nur darin unterscheidet, dass statt des Photomultipliers ein Spektrometer vorliegt. Mit diesem können die Wellenlängen des Lumineszenzlichts bestimmt werden.

Funktionsweise der Vakuumpumpen:

Drehschieberpumpe: Im Wesentlichen besteht diese Art der Vakuumpumpen aus zwei Zylindern. Einem Hohlzylinder mit einem Vollzylinder in seinem Inneren. Der Innere Zylinder rotiert entlang der Innenwände des Hohlzylinders, er führt also eine exzentrische Bewegung zu dem Hohlzylinder aus. Um dies zu ermöglichen werden Schieber (vgl. Abb. 4) aus dem Vollzylinder ausgefahren. Im Hohlzylinder befinden sich Öffnungen zum Ein- bzw. Auslass von Molekülen, sodass über den inneren Zylinder welche verdrängt werden können, ohne andere Moleküle hineinzulassen.

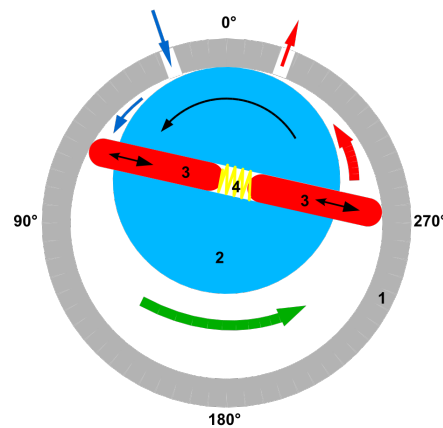


Abbildung 4: Schematische Darstellung einer Drehschieberpumpe.[5]

Turbomolekularpumpe: Bei Turbomolekularpumpen werden Turbinen verwendet, um mittels eines Pumpgases eine molekulare Strömung zu erzeugen (vgl. Abb. 5). Letztere wird genutzt, damit die verbliebenen Moleküle nach Einsatz der Drehschieberpumpe hinaus gezogen werden.

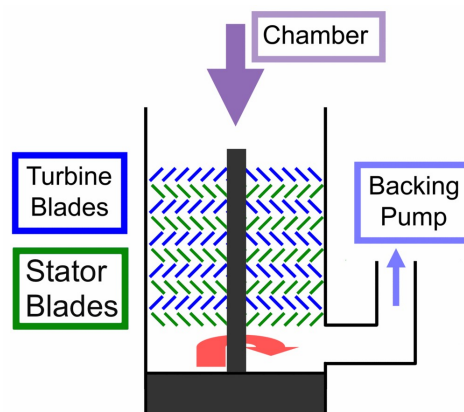


Abbildung 5: Schematische Darstellung einer Turbomolekularpumpe.[6]

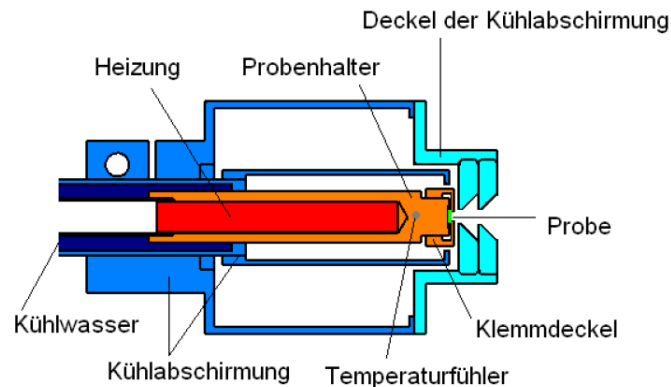


Abbildung 6: Schematische Darstellung des Probenkopfs.[2]

Der Probenkopf ist in Abb. 6 noch einmal explizit dargestellt. Als Heizverfahren dient hier das Trägerheizverfahren. Dabei wird der Messkristall auf einem Träger fixiert (Klemmdeckel) und dort erhitzt. Um wie in Abschnitt 2.1 beschrieben die verschiedenen Energieniveaus mit ähnlich kurzen Endleerungszeiten zu messen, muss ein kontinuierlicher Wärmeübertrag vorliegen. Zudem ist auch der Zufluss für Kühlwasser dargestellt, wobei ebenso Kühlabschirmungen eingebaut sind. Des Weiteren ist ein Temperaturfühler integriert, welcher wichtiger Bestandteil zu der Aufnahme einer Glühkurve ist.

Für die ionisierende Strahlung wird hier eine ^{60}Co -Quelle verwendet.

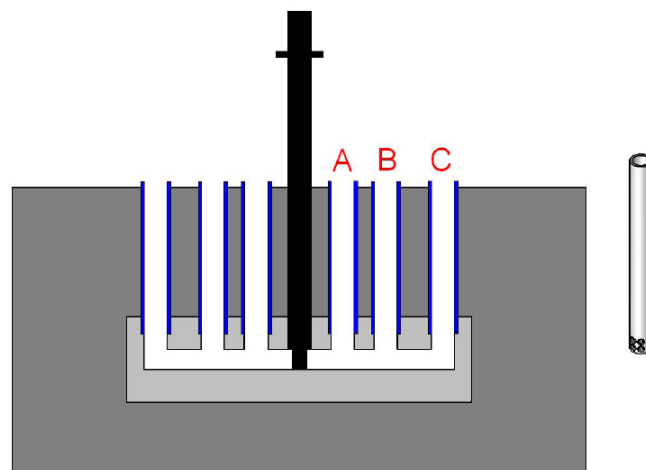


Abbildung 7: Schematische Darstellung des Bestrahlungsapparats (links) und des Probenröhrchens (rechts).[2]

Als Bestrahlungsapparat dient der in Abb. 7 dargestellte Aufbau. Die Stabquelle sitzt dabei in der Mitte und das Probenröhrchen mit dem Thermolumineszenzkristall kann in A, B oder C gesockelt werden, wobei die Abstände zu der Quelle dann jeweils 1,5 cm, 3 cm bzw. 5 cm betragen.

Das ^{60}Co zerfällt nahezu fast vollständig über einen β -Zerfall in einen angeregten Zustand von ^{60}Ni . Dieser zerfällt weiterhin unter Aussendung zweier γ -Quanten (1,17 MeV bzw. 1,33 MeV) in den Grundzustand. Der Bestrahlungsapparats ist so präpariert, dass die Elektronen aus dem β -Zerfall keine Bremsstrahlung aussenden.

Für die Durchführung des Versuchs sollen zunächst mittels des Photomultipliers die Glühkurven für zwei LiF-Kristalle aufgenommen werden. Die Dosis einer dieser Kristalle ist bekannt und die des anderen soll dadurch bestimmt werden. Für zwei CaF-Kristalle wird der Vorgang wiederholt.

Zum Schluss soll dann noch eine Messung eines CaF-Kristalls mit dem Spektrometer durchgeführt werden.

4. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Abschnitt werden die Daten ausgewertet, welche wie in Abschnitt 3 beschrieben aufgenommen wurden. Daraufhin werden die Ergebnisse diskutiert.

4.1. Beobachtungen und Analyse

Das erste Unterkapitel beschäftigt sich mit den Besonderheiten bei der Datenaufnahme, sowie der Auswertung.

4.1.1. Beobachtungen

Bei der Aufnahme der Glühkurve für den ersten Kristall (Nr. H107) fiel auf, dass keinerlei Peaks zu erkennen war. Dies folgt vermutlich daher, dass die Probe nicht korrekt eingesetzt wurde und das Lumineszenzlicht deswegen den Photomultiplier nicht erreicht hat. Aus diesem Grund wurde zur Auswertung ein weiterer Datensatz zur Verfügung gestellt, welcher im Folgenden genutzt wurde.

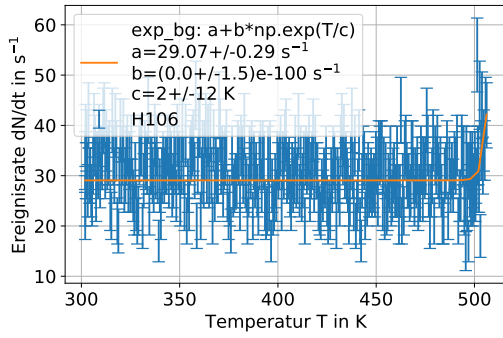
4.1.2. Untergrundmessung

Für die Auswertung werden zunächst die Untergrundmessungen mit einer Exponentialfunktion¹ angepasst.

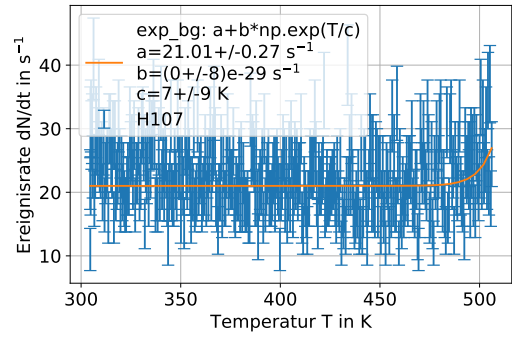
$$\frac{dN}{dt} = a + b \cdot \exp\left(\frac{t}{c}\right) \quad (4.1)$$

Für die vier Kristalle sind diese in Abb. 8 abgebildet.

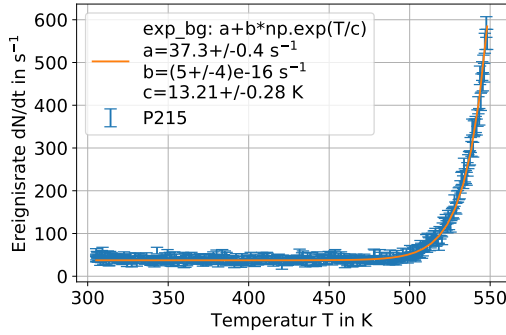
¹über die Funktion `curve_fit` der Python-Bibliothek „matplotlib“



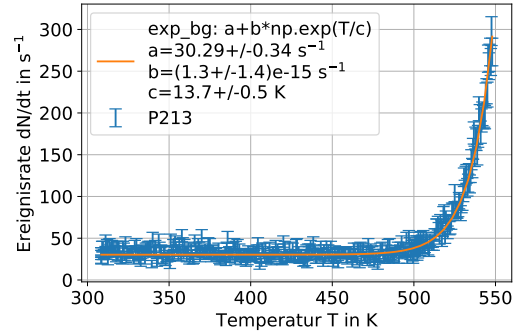
(a) Referenzkristallprobe Nr. H106



(b) Kristallprobe Nr. H107



(c) Referenzkristallprobe Nr. P215



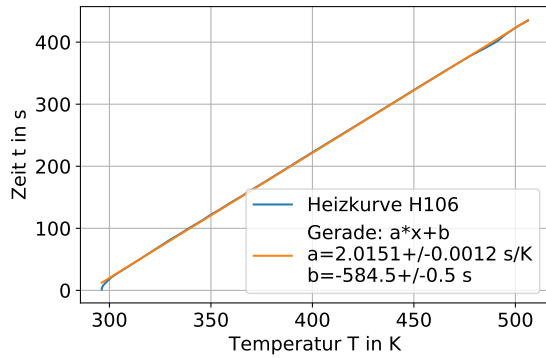
(d) Kristallprobe Nr. P213

Abbildung 8: Untergrundmessungen der vier Kristalle.

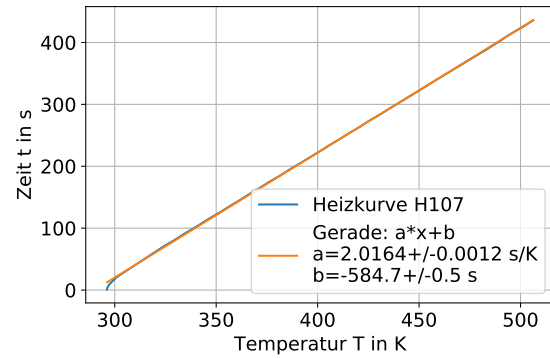
Für die Ereignisse N werden hier und im Folgenden eine Poisson-Verteilung angenommen. Danach ist die Unsicherheit $u(N) = \sqrt{N}$.

4.1.3. Heizkurve

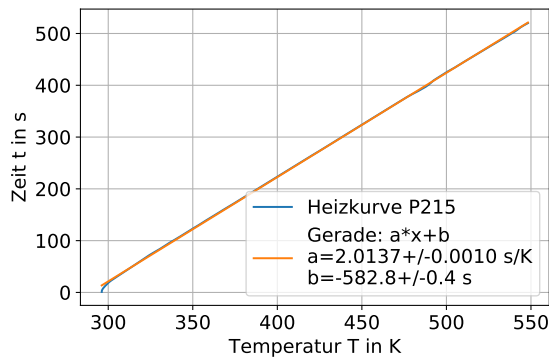
Um von $\frac{dN}{dt}$ zu $\frac{dN}{dT}$ kommen muss die Heizkurve bestimmt werden. Es zeigt sich, dass diese, mit Ausnahme des Anfangs, linear ist. Für alle vier Kristalle ist die Heizkurve in Abb. 9 abgebildet. Die durchschnittliche Heizkurve hat eine Steigung $a = \beta^{-1} = (2,0153 \pm 0,0013) \text{ s/K}$.



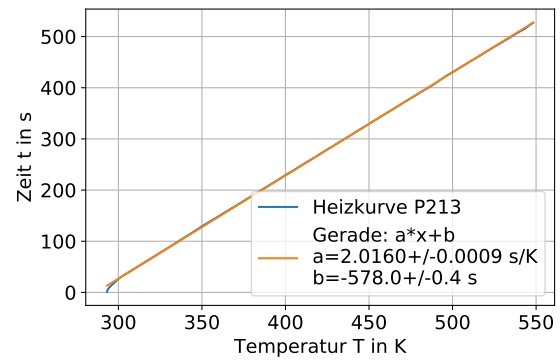
(a) Referenzkristallprobe Nr. H106



(b) Kristallprobe Nr. H107



(c) Referenzkristallprobe Nr. P215

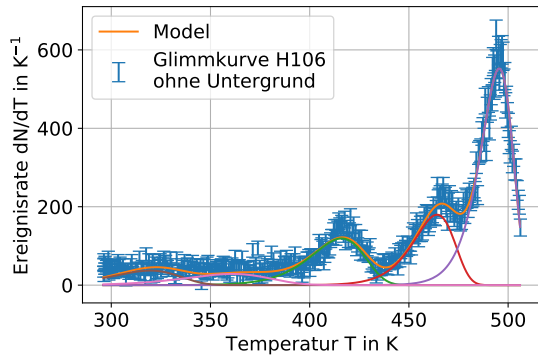


(d) Kristallprobe Nr. P213

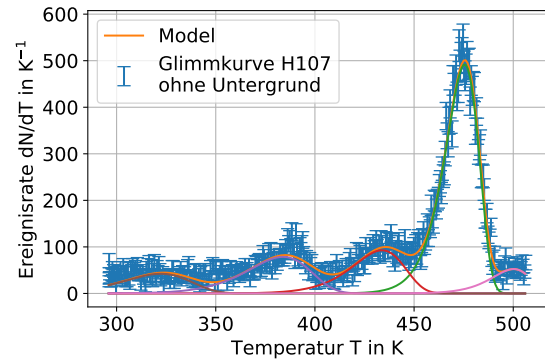
Abbildung 9: Heizkurven der vier Kristalle.

4.1.4. Peakbestimmung

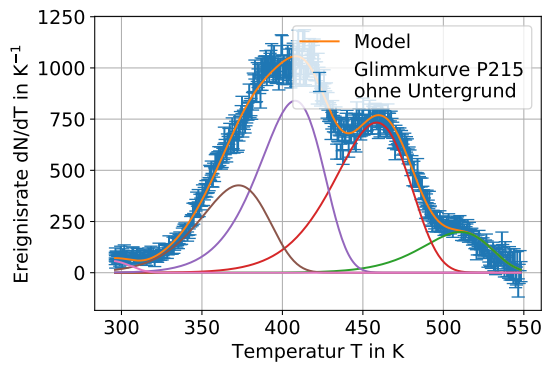
Zur Bestimmung der Peaks wird das Programm GlowFit v1.3 benutzt. Die Messdaten werden um den zuvor bestimmten exponentiellen Hintergrund korrigiert. Außerdem können die Ereignisraten mittels der Heizkurve in Ereignisse pro Temperaturänderung durch Multiplikation mit a angegeben werden. Dann können mehrere Peaks an diese angepasst werden. Die Form der Peaks ist in (2.15) durch I_m , T_m und E definiert. Das Resultat ist in Abb. 10 aufgeführt. Hierbei ist in gelb immer die Summe der Peaks dargestellt.



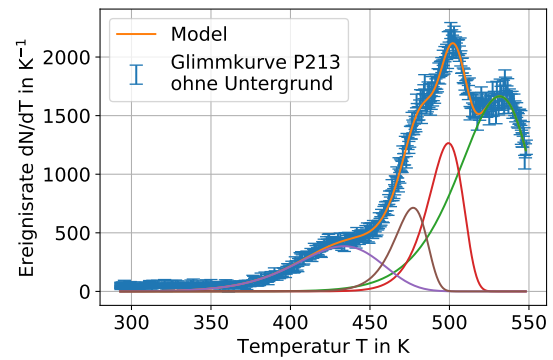
(a) Referenzkristallprobe Nr. H106



(b) Kristallprobe Nr. H107



(c) Referenzkristallprobe Nr. P215



(d) Kristallprobe Nr. P213

Abbildung 10: Bestimmung der Peaks der Glühkurve der vier Kristalle.

Die Informationen zu den Peaks sind in Tabelle 1 aufgeführt.

4.1.5. Dosisbestimmung

Die Dosis D lässt sich mit einer Referenz Dosis D_{ref} somit aus dem Verhältnis der Integrale bzw. gesamten Fläche bestimmen.

$$D = \frac{I}{I_{\text{ref}}} D_{\text{ref}} \quad (4.2)$$

Es folgen die Dosen in Tabelle 2.

	I_m/K^{-1}	T_m/K	Energie E/eV	Fläche	totales Integral I
H106 _{ref}	119,07	416,04	1,07	4362	24 225
	179,75	464,18	1,77	5034	
	552,9	495,52	2,58	11 878	
H107	78,64	383,9	0,77	3353	20 793
	92,75	433,8	1,2	3298	
	491,99	475,5	2,28	11 341	
P213	385,93	433,65	0,57	27 454	170 529
	714,01	477,18	1,9	19 740	
	1266,08	499,39	1,95	37 206	
	1664,81	531,57	1,03	86 130	
P215 _{ref}	426,65	372,8	0,53	23 808	125 459
	839,8	407,93	0,69	44 316	
	733,21	458,53	0,74	45 408	
	198,87	510,63	1,02	11 254	

Tabelle 1: Parameter der dominanten ($I_m > 60 \text{ K}^{-1}$) gefitteten Peaks. Das totale Integral ist das durch Glühkurven approximierte Integral über den Bereich der Messung.

	H106 _{ref}	P215 _{ref}	H107	P213
Dosis D in Sv	0,62	0,842	0,532	1,144
Bestrahlungszeit in h	$2,278 \pm 0,008$	$3,093 \pm 0,011$	$1,954 \pm 0,007$	$4,203 \pm 0,015$

Tabelle 2: Referenz- und berechnete Dosen D in mGy. Außerdem sind die resultierenden Bestrahlungszeiten in h aufgelistet.

4.1.6. Bestrahlungszeit

Die zeitliche Ableitung der Dosis ist:

$$\dot{D} = \frac{kA}{r^2} = \frac{kA_0}{r^2} e^{-\lambda t} \quad (4.3)$$

Wobei A die Aktivität und $k = 9,3 \cdot 10^{-17} \text{ Gy}^2/\text{sBq}$ eine Konstante ist. Gegeben waren der Abstand $r = 5 \text{ cm}$ und die Halbwertszeit $T_{1/2} = \ln 2/\lambda = 5,2714 \text{ a}$. Die Aktivität A_0 betrug am 19.09.1986 nach Angabe $1,58 \cdot 10^8 \text{ Bq}$. Für γ - und β -Strahlung ist bei der Umrechnung von Dosis $D[\text{Gy}]$ in Äquivalenzdosis $H[\text{Sv}]$ kein zusätzlicher Faktor nötig ($q = 1$ in (2.11)). Der zeitlicher Verlauf der Aktivität ist in Abb. 11 dargestellt.

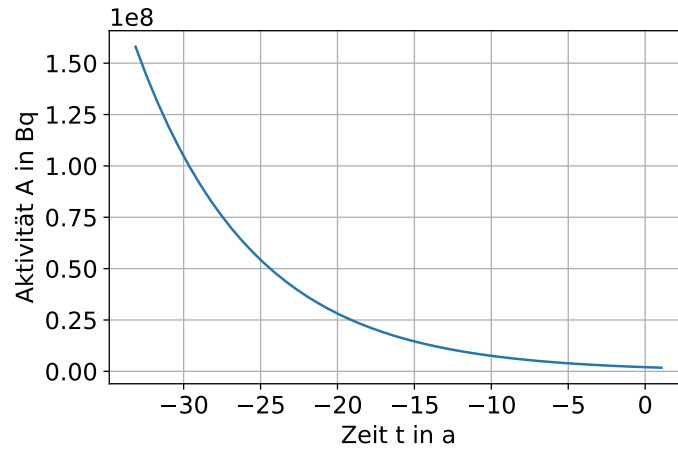


Abbildung 11: Zeitlicher Verlauf der Aktivität. Der Zeitpunkt $t = 0$ ist der Zeitpunkt des Experiments.

Wenn man die Dosisleistung, welche proportional zur Aktivität ist, für den Zeitraum einer Woche betrachtet, erkennt man dass die Aktivität in guter Näherung konstant ist (weil $T_{\text{Woche}} \ll T_{1/2}$). Das heißt für die Bestrahlungszeit t_r ist die Dosis linear.

$$\dot{D} \cdot t_r = D \quad (4.4)$$

Für den Zeitraum von zwei Wochen vor dem Experiment ergibt sich aus Abb. 12 eine durchschnittliche Dosisleistung von $\langle \dot{D} \rangle = (7,561 \pm 0,027) \cdot 10^{-8} \text{ Sv/s}$. Die resultierenden Bestrahlungszeiten sind in Tabelle 2.

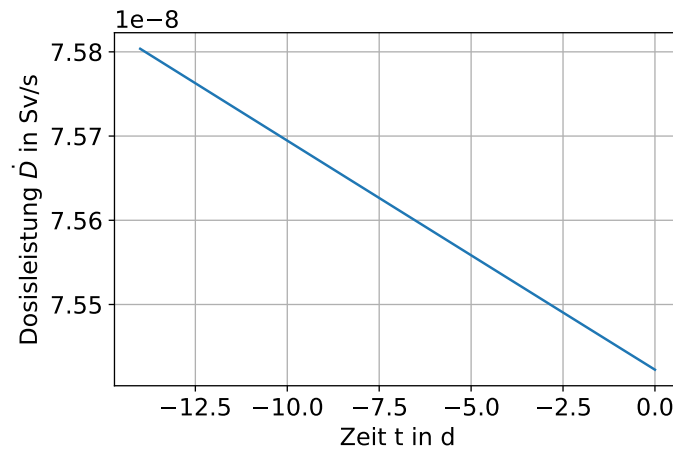


Abbildung 12: Zeitlicher Verlauf der Dosisleistung \dot{D} . Der Zeitpunkt $t = 0$ ist der Zeitpunkt des Experiments.

4.1.7. Wellenlängenspektrum

Zunächst lässt sich wieder eine Heizkurve bestimmen. Diese ist in Abb. 13 zu finden.

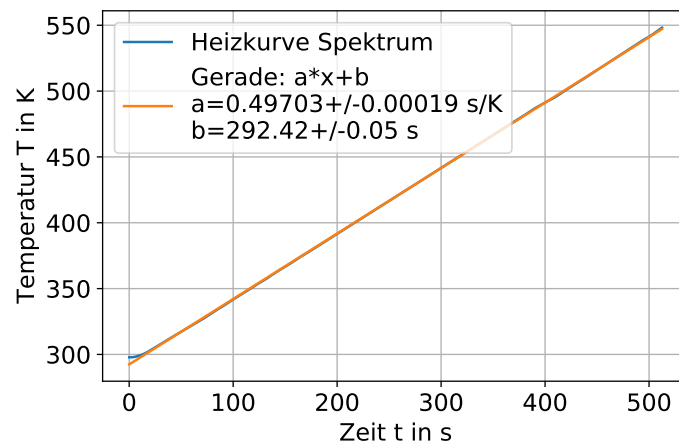


Abbildung 13: Heizkurve bei der Spektralmessung.

Damit lassen sich nun die Zeiten in Temperaturwerte Umrechnen. Die gemessenen Wellenlängen werden um den jeweiligen Hintergrund reduziert. Es werden einige Messwerte verworfen, wenn sie entweder geringer als die Untergrundkorrektur sind oder lokal sehr

hoch. Die lokalen Peaks treten durch kleinere Defekte in der Elektronik auf. Es ergibt sich die Verteilung an Ereignissen aus Abb. 14.

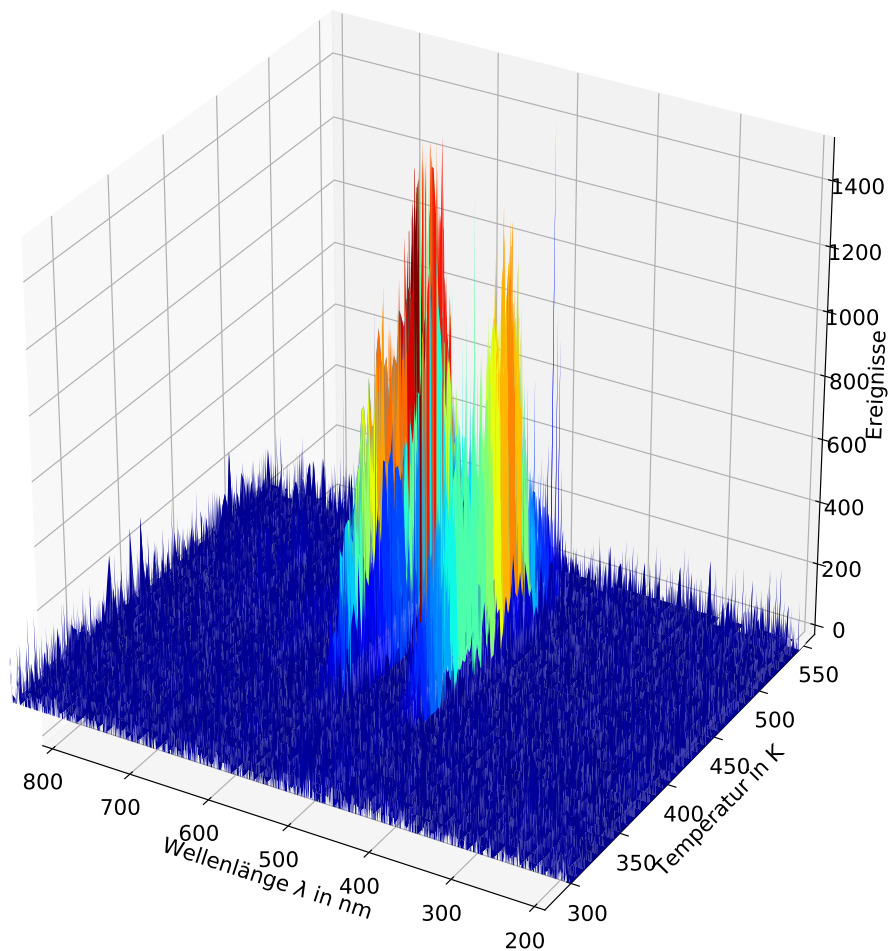


Abbildung 14: Dreidimensionales Wellenlängenspektrum.

In der zweidimensionalen Abb. 15 mit zusätzlichem Binning sind die Peaks deutlicher zu bestimmen.

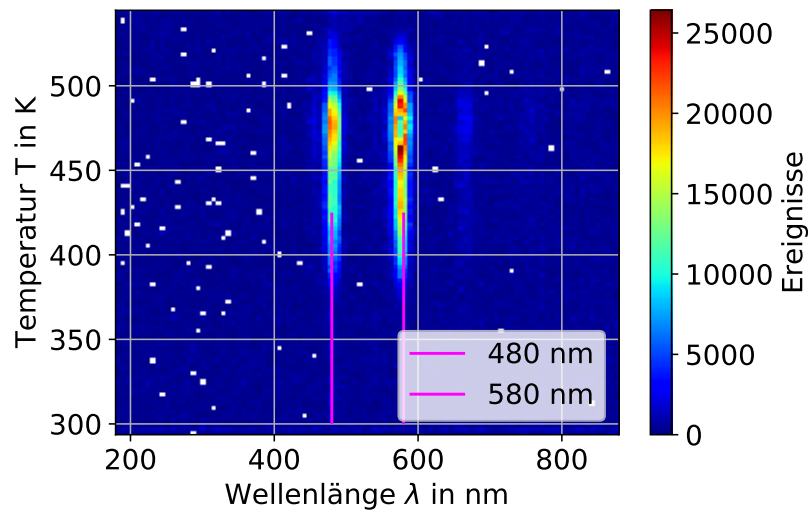


Abbildung 15: Zweidimensionales Wellenlängenspektrum.

Es zeigt sich, dass die Peaks bei gleichen Wellenlänge und verschiedenen Temperaturen auftreten. Man kann die Ereignisse entlang der Temperaturachse aufsummieren und erhält so Abb. 16. Die Unsicherheiten der Gaußverteilungen sind ihre Standardabweichungen.

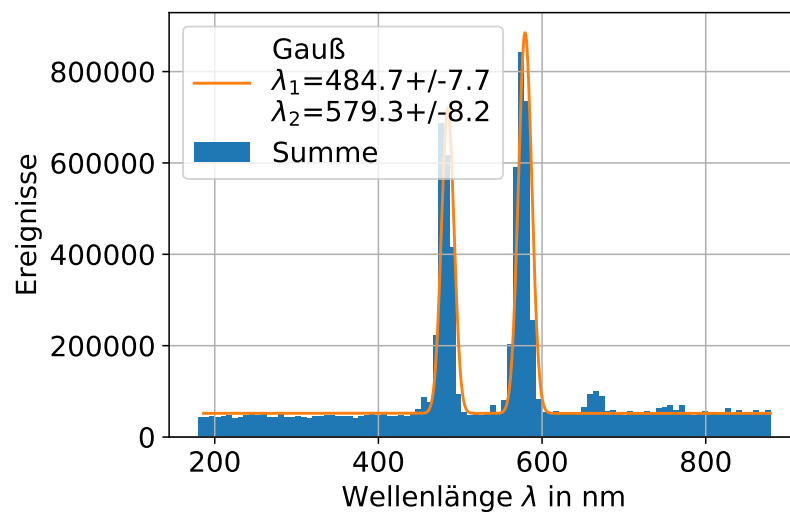


Abbildung 16: Summiertes Wellenlängenspektrum.

Die Umrechnung einer Wellenlänge in eine Energie erfolgt über

$$\lambda \frac{\omega}{2\pi} = c \implies E = \hbar\omega = \hbar c \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{hc}{\lambda}. \quad (4.5)$$

Die resultierenden Rekombinationsenergien sind somit $E_1 = (2,56 \pm 0,04)$ eV und $E_2 = (2,140 \pm 0,030)$ eV bestimmen.

4.2. Diskussion

An dieser Stelle sollen nun die Ergebnisse genauer betrachtet werden, angefangen mit den in Abb. 10 dargestellten Glühkurven. Die der Kristallproben H106 und H107 zeigen einen erwartungsgemäßen gleichartigen Verlauf. Dort liegen die relativen Peakpositionen zueinander in nahezu den gleichen Temperaturschritten, jedoch um ca. 30 K verschoben. Ein Grund dafür ist, dass die in GlowFit erhaltenen Fit-Parameter sehr stark davon abhängen, wie die Startparameter gewählt wurden. Daraus folgen große Unsicherheiten, für die sich an dieser Stelle keine exakten Werte angeben lassen. Weiterhin erlauben diese Unsicherheiten die Bestätigung der Annahme, dass die Kristalle tatsächlich von dem gleichen Typ sind.

Anders sieht dies für die Proben P213 und P215 aus. Auch hier lässt sich über die Peakverhältnisse (jeweils breiter Doppelpeak) ein ähnlich Verlauf erkennen. Äußerst auffällig ist jedoch, dass die Peakpositionen zwischen den beiden Kristallen ca. 100 K voneinander verschoben sind. Dies indiziert, dass auch hier ein Fehler während der Versuchsdurchführung aufgetreten ist. Da es lediglich nach einer Verschiebung auf der Temperaturachse aussieht, kann das integrierte Thermometer oder die verwendete Software eine Fehlfunktion erlitten haben. Wahrscheinlicher ist jedoch, dass der P213-Kristall verunreinigt war, da er z. B. bei einer vorherigen Gruppe, die denselben Versuch durchgeführt hat, fallen gelassen wurde. Durch die Verschiebung und des für diesen Kristall dadurch abgeschnittenen Doppelpeaks folgt ebenso eine Diskrepanz in der Dosis zwischen diesem Kristall und der Referenzprobe.

Aufgrund der Tatsache, dass die aufgenommenen Glühkurven für die H106/H107 Kristalle sich ähnlich zu derjenigen aus Abb. 2 verhält, lässt sich daraus schließen, dass es sich bei diesen Kristallen um LiF handelt. Folglich sind P213 und P215 CaF-Kristalle.

Für die ermittelten Bestrahlungszeiten ergeben sich für die Proben Werte zwischen zwei und vier Stunden. Diese erscheinen in dem Kontext sinnvoll, dass die Bestrahlung vor Beginn der Versuchsdurchführung begonnen hat und die Kristalle der Reihe nach zur Vermessung von der ^{60}Co -Quelle entfernt wurden. Wobei zu beachten ist, dass der Wert der H107 Probe aus einem zusätzlichen Datensatz entsprang.

Zuletzt kam die Spektralanalyse. Hier ließen sich zwei Wellenlängen ermitteln, für welche die Anzahl der Ereignisse über alle Temperaturen ein Maximum vorweist. Diese entsprechen $\lambda_1 = (484,7 \pm 7,7) \text{ nm}$ und $\lambda_2 = (579,3 \pm 8,2) \text{ nm}$, woraus die Energien der Rekombinationszentren $E_1 = (2,56 \pm 0,04) \text{ eV}$ und $E_2 = (2,140 \pm 0,030) \text{ eV}$ folgen. Dass exakt zwei Energien besonders häufig auftreten, deutet auf gezielte Dotierung hin.

5. Schlussfolgerung

Im Großen und Ganzen ließen sich alle Eigenschaften der Thermolumineszenz zeigen, welche mit dem vorliegenden Aufbau zu darstellbar waren und die Ergebnisse erscheinen physikalisch sinnvoll.

Um jedoch bessere Ergebnisse zu erzielen, wäre es für die Statistik sinnvoll weitere Kristalle zu untersuchen. Ein weiterer limitierender Faktor ist, dass die Anzahl der Haftstellen für die zu verwendenden Kristalle zwar hinreichend groß sein soll, aber auch finit ist. Nach einer Strahlungszeit, die lang genug ist, um (fast) alle Haftstellen zu füllen, kann die Dosimetrie keine genauen Angaben mehr zu der Dosis geben.

A. Anhang

A.1. Unsicherheiten

Jegliche Unsicherheiten werden nach GUM bestimmt und berechnet. Die Gleichungen dazu finden sich in 17 und 18. Für die Unsicherheitsrechnungen wurde die Python Bibliothek „uncertainties“ herangezogen, welche den Richtlinien des GUM folgt. Für die Unsicherheiten der Parameter in Annäherungskurven wurden die y -Unsicherheiten der anzunähernden Werte beachtet und die Methode der kleinsten Quadrate angewandt. Dafür steht in der Bibliothek die Methode „scipy.optimize.curve_fit()“ zur Verfügung. Für digitale Messungen wird eine rechteckige Verteilung mit $\sigma_X = \frac{\Delta X}{2\sqrt{3}}$ und für analoges Ablesen wird eine Dreiecksverteilung mit $\sigma_X = \frac{\Delta X}{2\sqrt{6}}$ angenommen. Die jeweiligen ΔX sind im konkreten Abschnitt zu finden.

$$x = \sum_{i=1}^N x_i; \quad \sigma_x = \sqrt{\sum_{i=1}^N \sigma_{x_i}^2}$$

Abbildung 17: Formel für kombinierte Unsicherheiten des selben Typs nach GUM.

$$f = f(x_1, \dots, x_N); \quad \sigma_f = \sqrt{\sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \sigma_{x_i} \right)^2}$$

Abbildung 18: Formel für sich fortpflanzende Unsicherheiten erster Ordnung nach GUM.

Literatur

- [1] N. Hüskens. „Untersuchung der Reproduzierbarkeit eines Thermolumineszenzaufbaus“. In: (2011). URL: https://www.uni-muenster.de/imperia/md/content/physik_kp/agkhoukaz/bamadipdok/ba_nh.pdf.
- [2] S. Korsten. „Aufbau und Erprobung eines Messstands für die Thermolumineszenzdosimetrie“. In: (2010).
- [3] prof. dr hab. Pawel Bilski. *DEPARTMENT OF RADIATION PHYSICS AND DOSIMETRY - NZ63*. URL: <https://www.ifj.edu.pl/dept/no6/nz63/download/GlowFit/?lang=en>.
- [4] I. Stegun M. Abramowitz. „Handbook of Mathematical Functions“. In: (1972).
- [5] Wikipedia. *Drehschieberpumpe*. URL: <https://de.wikipedia.org/wiki/Drehschieberpumpe>.
- [6] Wikipedia. *Turbomolecular pump*. URL: https://en.wikipedia.org/wiki/Turbomolecular_pump.