

Strahlendosimetrie mit Exoelektronen

Eine Methode für den Nachweis niederenergetischer Strahlung

Von Wilhelm Kriegseis, Arthur Scharmann und Winfried Senger

Der Umgang mit Röntgenröhren, Teilchenbeschleunigern oder radioaktiven Quellen oder der Aufenthalt in kerntechnischen Anlagen erfordern besondere Sicherheitsmaßnahmen. Diese sind in der Bundesrepublik durch die Strahlenschutzverordnung geregelt. Hierzu gehört unter anderem die individuelle Erfassung der Strahlendosen, die strahlenexponierte Personen aufnehmen. Seit mehreren Jahren wächst das Interesse an Personendosimetern für den Nachweis niederenergetischer Strahlung. Die Methode der thermisch stimulierten Exoelektronenemission (TSEE) ist für diese Anwendung besser geeignet als die bisher üblichen Film- oder Thermolumineszenz-Dosimeter. Sie erfaßt Gammastrahlung und niederenergetische Betastrahlung mit gleicher Empfindlichkeit. Vom I. Physikalischen Institut der Universität Gießen und dem Battelle-Institut in Frankfurt wurde ein TSEE-Dosimetertyp entwickelt, der sich durch hohe Zuverlässigkeit der Dosisanzeige und einen weiten Meßbereich auszeichnet. Das I. Physikalische Institut hat außerdem ein vollautomatisches Gerät zur Auswertung dieser Dosimeter gebaut.

Von einem Personendosimeter wird auf indirekte Weise die sogenannte Äquivalentdosis bestimmt, eine physikalische Meßgröße, die proportional zum Ausmaß der Strahlenschädigungen ist. Sie besteht aus dem Produkt der Energie, die durch einfallende ionisierende Strahlung pro Masseneinheit an Gewebe übertragen wurde, und einem Bewertungsfaktor zur Beschreibung der jeweiligen Gefährlichkeit unterschiedlicher Strahlungsarten. Für Photonen und Elektronen ist dieser Bewertungsfaktor gleich 1. Die Äquivalentdosis wird in der Maßeinheit Sievert (Sv) angegeben.

Für die Konzeption von Personendosimetern eignen sich alle Effekte, die Energieüberträge durch ionisierende Strahlung genügend lange speichern. Man verwendet vor allem die Schwärzung von Filmen oder die Thermolumineszenz von Festkörpern. In der Bundesrepublik werden jährlich mehr als zwei Millionen Film dosimeter aus-

gewertet. Weltweit wird der Film jedoch mehr und mehr von Thermolumineszenz-Dosimetern verdrängt. Eine weitere Methode, mit der sich das I. Physikalische Institut beschäftigt, ist die thermisch stimulierte Exoelektronenemission (TSEE).

Die physikalischen Prozesse bei TSEE und Thermolumineszenz sind eng miteinander verwandt. Bei beiden Methoden werden durch die Einwirkung ionisierender Strahlung Fehlstellen im Kristallgitter von Festkörpermaterialien, sog. Haftstellen, mit Elektronen besetzt. Zur Dosisauslesung erwärmt man die Dosimeter auf mehrere 100 °C. Aufgrund der Wärmezufuhr findet bei charakteristischen Temperaturen eine Entleerung dieser Haftstellen statt. Die so freigesetzten Elektronen können unter Lichtemission im Festkörper rekombinieren. Man beobachtet dann Thermolumineszenz. Wenn Elektronen aus oberflächennahen Haftstellen den Festkörper verlassen,

erhält man thermisch stimulierte Exoelektronenemission (TSEE). Der Unterschied zwischen Thermolumineszenz- und TSEE-Messungen besteht somit nur darin, daß im einen Fall die Emission von Licht, im anderen Fall die Emission von Elektronen nachgewiesen wird. In beiden Fällen erhält man Emissionsmaxima im Temperaturbereich der Haftstellenentleerung. Abbildung 1 zeigt an einem typischen Beispiel den Verlauf der TSEE-Intensität in Abhängigkeit von der Temperatur. Zur Dosisauswertung bestimmt man die Fläche unter dem TSEE-Hauptmaximum. Sie ist proportional zur Konzentration der mit Elektronen besetzten Haftstellen vor der Erwärmung und damit proportional zur Dosis.

Strahlung geringer Reichweite

Trotz ihrer engen Verwandtschaft in den physikalischen Mechanismen unterscheiden sich TSEE und Thermolumineszenz in einem für die Dosimetrie sehr wesentlichen Punkt. Zur TSEE tragen nur besetzte Haftstellen innerhalb einer Schichttiefe von maximal etwa 100 Nanometern unterhalb der Dosimeteroberfläche bei. Die Lichtemission bei Thermolumineszenz-Dosimetern erfolgt dagegen auch aus wesentlich größerer Tiefe. Trotzdem ist die Dosisempfindlichkeit beider Methoden etwa gleich. Aus diesem Grund eignet sich die TSEE besser als die Thermolumineszenz zum Nachweis von

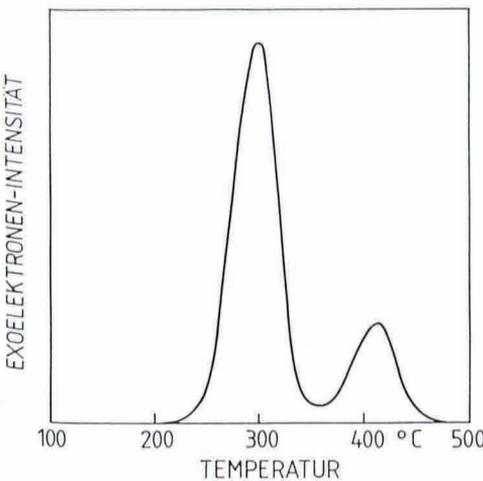


Abb. 1: Typische TSEE-Kurve eines BeO-Dünnschichtdetektors.

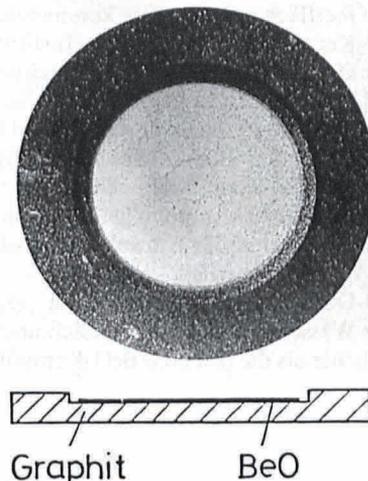
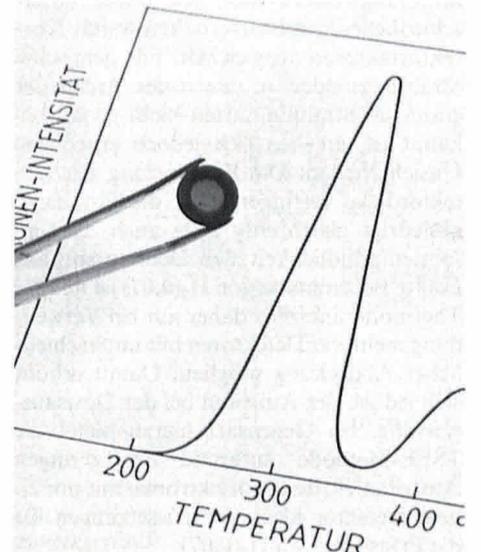


Abb. 2: BeO-Dünnschichtdetektor.



ionisierender Strahlung geringer Reichweite, wie zum Beispiel Betastrahlung (Elektronen) oder niederenergetischer Photonenstrahlung. Die radiologische Bedeutung dieser Art von Strahlung wurde in der Vergangenheit weit unterschätzt. Seit mehreren Jahren wächst jedoch zunehmend das Interesse an hierfür geeigneten Dosimetern.

Das kritische Organ des menschlichen Körpers für externe Strahlung dieser Art ist im wesentlichen die Basalschicht an der Innenseite der Epidermis der Haut. Sie ersetzt fortlaufend die Zellstruktur der Epidermis, deren äußere Schichten allmählich abgetragen werden. Die Dicke der Epidermis variiert zwischen etwa 0,04 mm am Kopf und 0,4 mm an der Innenseite der Hände und Fußsohlen. Für die Ermittlung der Strahlenbelastung der Haut empfehlen die Strahlenschutzrichtlinien daher die Bestimmung der Äquivalentdosis in einer Gewebetiefe von 0,07 mm. Sie soll mit Detektoren gemessen werden, die mit einer 0,07 mm dicken Schicht aus gewebeäquivalentem Material abgedeckt sind. Diese Dicke entspricht der Reichweite von Betastrahlung der Energie 60 keV (Kiloelektronenvolt). Für die so erhaltene Dosismessgröße hat die International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU) 1985 die Bezeichnung $H_S(0,07)$ eingeführt.

Filmdosimeter sind für diesen Zweck nicht geeignet, weil bereits ihre Kapselung etwa 0,25 mm dick ist und einen wesentlichen Anteil der nachzuweisenden niederenergetischen Strahlung absorbiert. Auch bei der Thermolumineszenz ergeben sich wegen der relativ großen effektiv wirksamen Detektordicke bei der Erfassung von $H_S(0,07)$ erhebliche Probleme. Ein Thermolumineszenz-Dosimeter ist für Betastrahlung der Energie von 1 MeV (Megaelektronenvolt) empfindlicher als bei 60 keV, wo die wirksame Detektordicke nur zu einem Bruchteil ausgenutzt wird. Bei exakt definierten Strahlungsfeldern läßt sich dieses unterschiedliche Ansprechverhalten durch Korrekturfaktoren ausgleichen. Für gemischte Strahlungsfelder, in denen der Anteil der einzelnen Strahlungsarten nicht genau bekannt ist, ergeben sich jedoch erhebliche Unsicherheiten. Die Reduzierung der Detektordicke verringert zwar die Probleme, erniedrigt gleichzeitig aber auch die Gesamtempfindlichkeit der Detektoren. Die exakte Bestimmung von $H_S(0,07)$ ist mit der Thermolumineszenz daher nur bei Verwendung mehrerer Detektoren mit unterschiedlicher Abdeckung möglich. Damit erhöht sich jedoch der Aufwand bei der Dosisauswertung. Im Gegensatz hierzu bietet die TSEE-Methode aufgrund der geringen Austrittstiefe der Exoelektronen mit nur einem Detektor ideale Voraussetzungen für die Erfassung von $H_S(0,07)$.

Berylliumoxid-Dünnschichtdetektoren

Die ersten Versuche zur Anwendung der Exoelektronenemission in der Dosimetrie fanden bereits 1957 statt, unter anderem auch im I. Physikalischen Institut der Universität Gießen. Schon damals zeigte sich, daß die TSEE sehr empfindlich auf ionisierende Strahlung anspricht. Die Methode war jedoch lange Zeit für die dosimetrische Praxis nicht geeignet, weil die Zuverlässigkeit der Dosisanzeige zu wünschen übrig ließ. Dieses Problem ergab sich aus der physikalischen Natur der Exoelektronenemission. Im Gegensatz zur Thermolumineszenz ist die TSEE ein Oberflächeneffekt. Ihre Intensität hängt entscheidend von der Wahrscheinlichkeit ab, mit der die aus Haftstellen freigesetzten Elektronen aus der Dosimeteroberfläche austreten. Diese Austrittswahrscheinlichkeit wird bei den meisten Materialien durch Gasadsorption an der Oberfläche beeinflusst. Das Aufheizen der Dosimeter auf mehrere 100 °C bei der Dosisauslesung bedingt eine Störung des Adsorptionsgleichgewichts.

Die Situation schien sich vor zwei Jahrzehnten zu verbessern, als am Oak Ridge National Laboratory in den USA speziell präparierte kommerzielle Berylliumoxid-Keramiken als TSEE-Dosimetermaterialien studiert wurden. Mit diesen Dosimetern waren sehr gut reproduzierbare Messungen möglich. Zahlreiche Laboratorien begannen daher, sich mit der Exoelektronenemission zu beschäftigen. Das Interesse erlosch allerdings sehr schnell wieder, nachdem sich etwa 1975 herausgestellt hatte, daß die Kondensation von Wasserdampf die Dosisanzeige dieser Keramiken in irreversibler Weise herabsetzte. Es deutete sich jedoch an, daß das unerwünschte Verhalten bei Wasserdampfkondensation nicht auf einer generellen Eigenschaft von Berylliumoxid (BeO) beruhte, sondern auf der hohen Konzentration chemischer Verunreinigungen in der Oberflächenschicht der kommerziellen BeO-Keramiken. Das Battelle-Institut in Frankfurt und das I. Physikalische Institut der Universität Gießen begannen daher mit der Entwicklung eines neuen TSEE-Dosimetertyps, den BeO-Dünnschichtdetektoren (Abb. 2). Diese Arbeiten wurden vom Innenministerium in Bonn gefördert, später vom Ministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.

BeO-Dünnschichtdetektoren sind gegenüber Wassereinwirkung wesentlich unempfindlicher als die früheren BeO-Keramiken. Sie ändern ihre Dosisanzeige zwar immer noch um 10 bis 20 Prozent, wenn sie sich nach der Bestrahlung für Testzwecke mehrere Tage in destilliertem Wasser befinden. Eine einmonatige Lagerung bei 70 °C in Luft oder in gesättigter Wasserdampf- oder

Methanoldampf-Atmosphäre hat dagegen keinen Einfluß auf die Dosisanzeige.

Die Herstellung von BeO-Dünnschichtdetektoren erfolgt in zwei Schritten:

- Aufdampfen einer etwa 150 Nanometer dicken Beryllium-Schicht in die Mulde eines kreisförmigen Graphitsubstrats.
- Anschließende Wärmebehandlung bei 1 300 °C in feuchtem Stickstoff zur Oxidation und Sensibilisierung der Aufdampfschicht.

Dosimetrische Eigenschaften

Wie bereits erwähnt, bietet sich die TSEE-Methode an, um die neue Dosisgröße $H_S(0,07)$ zu bestimmen. Hierzu werden die BeO-Dünnschichtdetektoren mit einer etwa 0,07 mm dicken Folie aus gewebeäquivalentem Material abgedeckt. Eine derartige Anordnung ergibt für Betastrahlung des Radionuklids ^{147}Pm , deren mittleren Energie 70 keV beträgt, die gleiche Dosisempfindlichkeit wie für Gammastrahlung langer Reichweite des Radionuklids ^{60}Co . BeO-Dünnschichtdetektoren eignen sich nicht nur zur Hautdosimetrie und Erfassung von Betastrahlung, sondern auch für den Photonen-Nachweis. Ihre Dosisanzeige ist über den Bereich von 6 Zehnerpotenzen linear. Die untere Nachweisgrenze liegt bei etwa 10 Mikrosievert. Bei wiederholten Bestrahlungen mit der gleichen Dosis beträgt die Standardabweichung der Dosisanzeige weniger als 5 Prozent. Nach der Dosisauslesung durch Aufheizung auf 590 °C sind die Detektoren im Gegensatz zu Thermolumineszenz-Dosimetern ohne thermische Nachbehandlung wieder einsatzfähig. Jeder Dosimetertyp, der zur Bestimmung der Äquivalentdosis dient, muß auch bei unterschiedlichen Strahlungsenergien die Energiedeposition in Gewebe wiedergeben. Aus diesem Grund bestehen die üblichen Thermolumineszenzdosimeter aus Material, das auf Strahlung wie Gewebe anspricht. Dies trifft bei Filmdosimetern nicht zu. Der Silbergehalt der strahlungsempfindlichen Schicht bewirkt hier eine erhebliche Überbetonung niederenergetischer Photonen. Filmplaketten werden daher mit unterschiedlichen Filtern abgedeckt, die eine nachträgliche Energiekorrektur ermöglichen.

Bei BeO-Dünnschichtdetektoren sprechen sowohl die exoelektronenaktive Schicht als auch das Graphitsubstrat annähernd wie Gewebe auf Strahlung an. Im Gegensatz zur Thermolumineszenz spielt die Materialzusammensetzung des Detektors hier jedoch nur eine untergeordnete Rolle. Wegen der sehr geringen wirksamen Schichtdicke erfolgt die Besetzung der Exoelektronen emittierenden Haftstellen überwiegend nicht durch die Wechselwirkungen der ioni-

sierenden Strahlung im Detektor selbst, sondern durch niederenergetische Elektronen, die in der Detektorabdeckung entstehen. Ausschlaggebend für die Energieabhängigkeit der Dosisanzeige ist daher primär die Materialbeschaffenheit der Abdeckung.

Dosisauslesung

Die mittlere Energie der Exoelektronen beim Austritt aus der Festkörperoberfläche beträgt weniger als 1 eV. Derart niederenergetische Elektronen werden üblicherweise mit Sekundärelektronenvervielfachern unter Vakuum nachgewiesen. Für dosimetrische Anwendungen empfiehlt sich jedoch die Benutzung von Gasdurchflußzählrohren, die bei geringerem technischem Aufwand eine höhere Langzeitstabilität der Nachweisempfindlichkeit ermöglichen. Die Dosimeter werden zur Dosisauslesung unmittelbar im Zählrohr aufgeheizt. Als Zählgas dient heute üblicherweise Methan. Jedes emittierte Exoelektron erzeugt am Zählrohr einen Ladungsimpuls, und die TSEE-Intensität ergibt sich aus der nachgewiesenen Impulsrate. Zur Erzielung einer möglichst hohen zeitlichen Impulsauflösung ist die Verwendung eines Proportionalzählrohrs vorteilhaft. Wegen der geringen Exoelektronenenergie erhält man damit allerdings im Vergleich zu den klassischen Zählrohranwendungen in der Kernphysik nur relativ niedrige Impulshöhen. Die Meßgenauigkeit verbessert sich, wenn der Druck und die Temperatur des Zählgases stabilisiert werden.

Vom I. Physikalischen Institut der Universität Gießen wurde ein derartiges Gerät für die Serienauswertung von BeO-Dünnschichtdetektoren entwickelt (Abb. 3 und Abb. 4). Es gestattet die gleichzeitige Eingabe von 48 Detektoren, die vollautomatisch mit einer Zykluszeit von etwa 50 Sekunden pro Detektor ausgewertet werden. Der Transport der Detektoren im Gerät, ihre Aufheizung sowie die Erfassung und Ausgabe der Meßdaten erfolgen unter Mikroprozessor-Steuerung. Ein umfangreiches Kontrollsystem bricht bei Defekten oder Fehlbedienungen die Messung ab und gibt Fehlermeldungen aus.

Die Detektoren werden zunächst in einem Eingabe-Magazin übereinander gestapelt. Ein vertikaler Transportstempel hebt sie auf das Niveau einer Mitnehmerscheibe, die sie in die Meßposition befördert. Zur Ausheizung wird eine Halogenlampe benutzt, die durch ein Quarzfenster auf die Rückseite des Graphitsubstrats der Dosimeter strahlt. Der TSEE-Nachweis erfolgt mit Hilfe eines zylindrischen Proportionalzählrohrs. Zur Erfassung der Dosimeter-Temperatur dient ein Sensor, der die emittierte

Wärmestrahlung der Dosimeteroberfläche nachweist. Diese Methode der Temperaturbestimmung schließt Wärmekontaktprobleme aus. Für die Wärmestrahlungsemission ist wegen der dünnen BeO-Aufdampfschicht primär das Graphitsubstrat verantwortlich. Unterschiedliche Gegebenheiten bei der Herstellung der BeO-Schicht haben daher keinen Einfluß. Nach der TSEE-Messung gelangen die Detektoren in ein Ausgabemagazin. Das gesamte Gerät wird unter konstantem Druck von Methan durchströmt. Beim Magazinwechsel sperren Gasventile und Schieber das Zählrohr

und die Kammer, in der sich die Mitnehmerscheibe dreht, gegen Luft ab.

Die Endtemperatur der Dosimeterausheizung und die Grenztemperatur, bis zu der die TSEE-Impulse zur Dosisbestimmung aufsummiert werden, lassen sich im Bereich bis 590 °C vorwählen. Das Gerät zeigt während der Messungen die Temperatur und TSEE-Raten digital an. Alle wesentlichen Meßparameter werden auf einem integrierten Streifen drucker ausgegeben. Die gesamte TSEE-Kurve läßt sich außerdem mit einem X/Y-Schreiber aufzeichnen oder zur digitalen Abspeicherung und für weitere

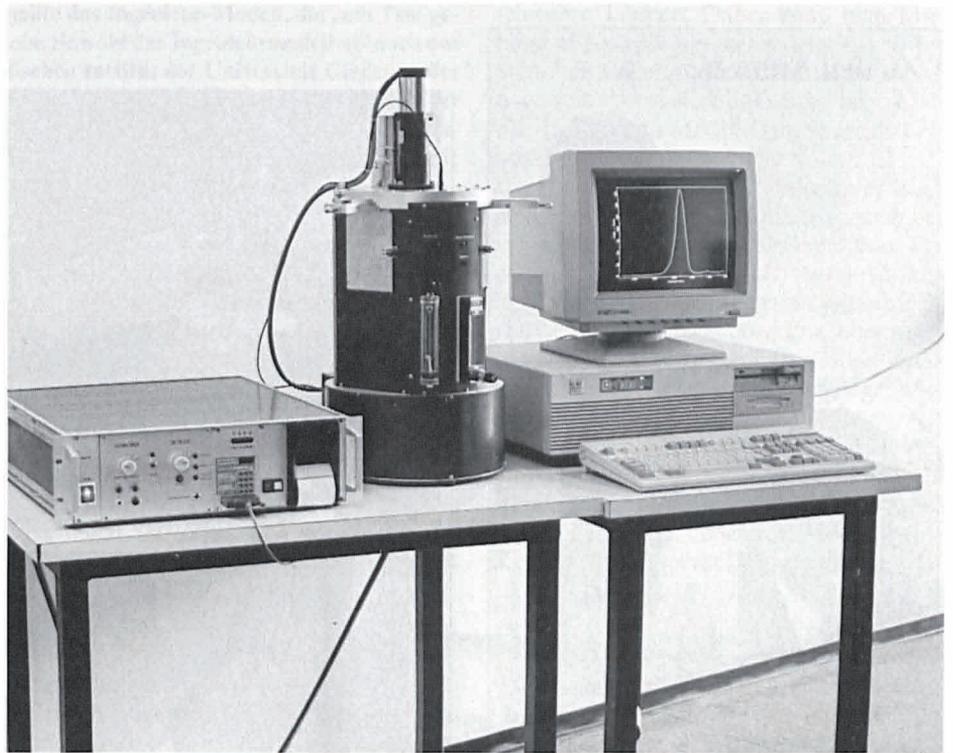


Abb. 3: TSEE-Auswertegerät.

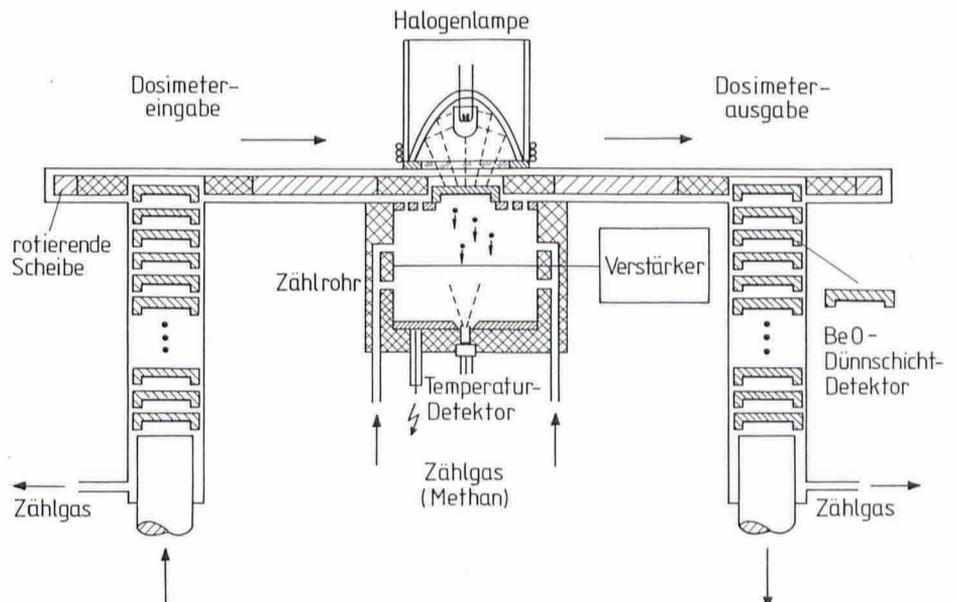


Abb. 4: Schematische Darstellung des TSEE-Auswertegerätes.

Auswertungen an einen externen Rechner übertragen.

Ein erster Prototyp dieses Geräts ist bereits seit Ende 1986 beim Staatlichen Materialprüfungsamt des Landes Nordrhein-Westfalen in Dortmund im Einsatz. Hier befinden sich inzwischen auch die Anlagen des Battelle-Instituts zur Herstellung der Dosimeter. Die Arbeiten in Dortmund dienen der Vorbereitung eines Feldversuchs für die praxisnahe Erprobung der TSEE-Methode. Eine neuere Version des TSEE-Auswertegerätes ist während der diesjährigen Hannover-Messe auf dem Stand der Hochschulen des Landes Hessen zu sehen.

Zu den Autoren:



Dr. Wilhelm Kriegseis, Jahrgang 1940, studierte an der Universität Gießen und der Technischen Hochschule München Physik. Er ist Akademischer Oberrat am I. Physikalischen Institut der Universität Gießen und beschäftigt sich mit anwendungsorientierter Forschung im Bereich der Oberflächenphysik.

Prof. Dr. Dr. h.c. D. Sc. Arthur Scharmann, Jahrgang 1928, seit 1969 Direktor des I. Physikalischen Instituts der Universität Gießen, ist Vorsitzender der Schutzkommission des Bundesministeriums des Innern, Mitglied der Strahlenschutzkommission des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit und Kurator der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig.

Dipl.-Ing. Winfried Senger, Jahrgang 1944, hat an der Technischen Universität Hannover Elektrotechnik studiert. Seit 1971 ist er im Fachbereich Physik der Universität Gießen tätig und für die Lösung elektronischer Problemstellungen zuständig.