Beeinträchtigung der optischen Eigenschaften und Veränderung der Fluoreszenz von Kunststoffszintillatoren durch Röntgenstrahlung

DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Thomas Zoufal
aus Elmshorn

Hamburg
2002

Gutachter der Dissertation: Prof. Dr. K. Wick
Prof. Dr. W. Scobel
Gutachter der Disputation: Prof. Dr. K. Wick
Prof. Dr. U. Strohbusch

Datum der Disputation: 6. Mai 2002

Dekan des Fachbereiches Physik und Vorsitzender des Promotionsausschusses: Prof. Dr. W. Büßer

Abstract

Radiation resistance of plastic scintillators becomes more and more important in high energy physics, especially calorimeters close to beampipes are exposed to a high radiation background. During irradiation the used polymers form color centers absorbing visible and ultraviolet light and so reducing the light yield. This leads to a decrease in energy resolution. The work on hand investigates the formation and decay of such absorption centers.

The absorption behaviour of two lightguide and four scintillator fibers was observed during and after irradiation with 100 keV X-rays in air by means of transmission spectroscopy. The light guides BCF-98 (Bicron) made of polystyrene and FL-51 (Hoechst) made of polymethylmethacrylate (PMMA)as well as the polystyrene scintillators SCSF-38, SCSF-81, SCSF-81(Y7) (Kuraray) und BCF-60 (Bicron) were investigated.

A permanent radiation damage induced by stable absorption centers is well known. In the presented investigations, it rises linearly with dose in BCF-98 up to doses of 6 kGy, but the radiation sensitivity is larger by a factor of 13 than in independent experiments with higher irradiation doses. According to this, a linear extrapolation of radiation damages at high doses to radiation sensitivity of polymers at low doses is impossible.

In addition to the permanent damage shortlived absorption centers decaying within hours were found in all fibers. In the lightguides their absorption is very weak. In PMMA this shortlived absorption can be attributed to a peroxide radical. For polystyrene the kinetics of absorption development is well described by a proposed model with radicals causing this shortlived damage. They recombine to stable absorption centers which produce the known permanent damage. The formation of radicals was observed in early irradiation phases despite the presence of oxygen in the fiber which is presumed to prevent the development of measurable concentrations of radicals.

Besides the damage of the basic matrix in ultraviolet regions all scintillators showed the formation of very fast developing and annealing absorptions in the visible spectrum. Depending on the type of fiber they are caused by one or two absorption centers. Partly they overlap the fluorescence spectrum, in SCSF-81 shortlived absorption was observed in the whole emission spectrum. BCF-60 builds up noticible absorptions only below the emission spectrum, SCSF-38 shows a broad absorption band in the red region caused by two centers. It has only a small influence on the fluorescence light.

A calculation of the influences of transmission loss on the fluorescence light was performed. The observed fluorescence light yield dropped off much more than explainable by transmission effects. This means that the fluorescence dyes are directly affected by irradiation. After irradiation, especially in SCSF-38 the dyes showed strong annealing effects. After 2 days they had recovered completely.

Kurzzusammenfassung

Die Strahlenresistenz von Kunststoffszintillatoren spielt in der Hochenergiephysik eine zunehmend größere Rolle; insbesondere strahlrohrnahe Kalorimeter sind einem sehr hohen Strahlungsuntergrund ausgesetzt. Die eingesetzten Polymere bilden durch Bestrahlung Farbstoffzentren, die sichtbares und UV-Licht absorbieren und so die Fluoreszenzlichtausbeute senken. Eine Verschlechterung der Energieauflösung des Detektors ist die Folge. Die vorliegenden Untersuchungen beschäftigen sich mit der Entstehung und dem Zerfall solcher Absorptionszentren.

Für zwei Lichtleiter- und vier Szintillatorfasern wurde das Absorptionsverhalten während und nach Bestrahlung mit 100-keV-Röntgenstrahlung in Luft mit Hilfe der Transmissionsspektroskopie beobachtet. Untersucht wurden die Lichtleiter BCF-98 (Bicron) aus Polystyrol und FL-51 (Hoechst) aus Polymethylmethacrylat (PMMA) sowie die Polystyrol-Szintillatoren SCSF-38, SCSF-81, SCSF-81(Y7) (Kuraray) und BCF-60 (Bicron).

Wohlbekannt ist ein permanenter optischer Strahlenschaden, der durch stabile Absorptionszentren hervorgerufen wird. Dieser entwickelt sich in BCF-98 in den hier durchgeführten Untersuchungen bis zu Dosen von 6 kGy proportional zur applizierten Dosis; die Strahlenempfindlichkeit ist jedoch um einen Faktor 13 größer als in unabhängigen Messungen mit höheren Bestrahlungsdosen, die zum Vergleich herangezogen wurden. Eine lineare Extrapolation von Strahlenschäden durch Hochdosisbestrahlungen auf die Strahlenempfindlichkeit der Polymere bei geringen Dosen ist demnach nicht möglich.

Zusätzlich zum Permanentschaden wurden in allen Fasern kurzlebige Absorptionszentren beobachtet, die innerhalb von Stunden zerfallen. In den Lichtleitern ist ihre Absorption sehr schwach ausgeprägt. Die kurzlebige Absorption in PMMA kann einem Peroxidradikal zugeordnet werden. Für Polystyrol kann die Kinetik der Absorptionsentwicklung mit einem vorgeschlagenen Modell beschrieben werden, indem diese kurzlebigen Absorptionen von Radikalen hervorgerufen werden, die dann zu stabilen Absorptionszentren rekombinieren. Diese rufen den bekannten Permanentschaden hervor. Obwohl ständig Sauerstoff in der Faser vorhanden war, der nach gängiger Annahme die Bildung von messbaren Konzentrationen von Radikalen verhindert, wurde deren Entstehung in den ersten Bestrahlungsphasen beobachtet.

Neben dem Schaden der Grundmatrix im UV-Bereich zeigten alle Szintillatoren die Bildung von sich sehr schnell entwickelnden und zurückbildenden Absorptionen im sichtbaren Bereich. Sie werden abhängig von der Fasersorte von einem oder zwei Absorptionszentren hervorgerufen. Zum Teil überlappen sie den Fluoreszenzlichtbereich, bei SCSF-81 wurde im gesamten Fluoreszenzspektrum ausheilende Absorption beobachtet. BCF-60 bildet deutliche Absorptionen nur unterhalb des Emissionsspektrums, SCSF-38 zeigt ein von zwei Zentren hervorgerufenes breites Absorptionsband im roten Spektrum. Es hat nur wenig Einfluss auf das Fluoreszenzlicht.

Eine Berechnung der Einflüsse der Transmissionsverluste auf das Fluoreszenzlicht wurde durchgeführt. Die beobachtete Fluoreszenzlichtintensität fiel in den Bestrahlungen sehr viel stärker aus als durch Transmissionseffekte erklärbar; die Fluoreszenzfarbstoffe werden direkt durch die Strahlung in Mitleidenschaft gezogen. Nach den Bestrahlungen zeigten sich besonders in SCSF-38 starke Ausheileffekte der Farbstoffe, die nach 2 Tagen Ausheilzeit wieder vollständig reaktiviert waren.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis

Kapitel 1

Einleitung

Die Suche der Menschen nach Gesamtzusammenhängen ist im letzten Jahrhundert auf dem Gebiet der Teilchenphysik sehr weit fortgeschritten. Angefangen von der Entwicklung des Rutherfordschen Atommodells 1911, in dessen Experimenten das Prinzip der Streuexperimente manifestiert wurde, drang man in immer kleinere Dimensionen vor. Eine Inflation von neu entdeckten Teilchen folgte an den gebauten Partikelbeschleunigern. Von diesem Teilchenzoo kam man in der neuen Disziplin Hochenergiephysik in den sechziger Jahren zum Standardmodell der Teilchenphysik, welches auf 24 Elementarteilchen und deren Austauschteilchen basiert. Jedoch ist auch dieses Modell unvollständig. Zum Beispiel können einfache Fragen nach der Masse oder der Ladung von Teilchen nicht zufrieden stellend beantwortet werden. Das Bestreben, mit neuen Teilchenbeschleunigern tiefer in die Materie einzudringen, ist vorhanden; die Herausforderung ist groß.

Benötigt werden hierfür nicht nur Beschleuniger, die größere Energien liefern, sondern auch verbesserte Detektoren, die mit hoher Datenrate Teilchenstöße mit großer Präzision vermessen, ohne dabei von der sie durchdringenden Strahlung in Mitleidenschaft gezogen zu werden. Ein besonderes Augenmerk liegt dabei auf den Energiemessgeräten im Detektor, den sogenannten Kalorimetern. Sie sind meist aus einem Gemisch aus Absorber und Nachweisgerät aufgebaut, mit dem das Streuteilchen abgebremst und die übertragene Energie gemessen wird. Dabei wird in ihnen praktisch die gesamte Energie der Streuteilchen deponiert. Eine Schädigung des Materials ist oftmals die Folge.

Kunststoffszintillatoren erfüllen in der Hochenergiephysik sehr häufig die Aufgabe der Energiebestimmung solcher Streuteilchen in Teilchendetektoren. Über den in Kunststoffszintillatoren sehr schnell abklingenden Szintillationsprozess ist eine Messung mit so hoher Datenrate möglich, wie sie den aktuellen Anforderungen in modernen Teilchendetektoren entspricht; zudem sind Plastikszintillatoren kostengünstig und einfach in beliebige Form zu bringen. Üblich sind dabei die Plattenform sowie Fasern runden oder eckigen Querschnitts. Kalorimeter, in denen Szintillatorfasern in einen Absorber eingebettet sind, sogenannte Spaghetti-Kalorimeter, bieten hier den Vorteil, ein hohes Absorptionsvermögen mit gleichzeitig guter Orts- und Energieauflösung zu verbinden. Das von hochenergetischen Teilchen induzierte Szintillationslicht wird in der Faser bis hin zu einem Photomultiplier geleitet; die in organischen Szintillatoren eher geringe Lichtausbeute ist durch das Vorhandensein weniger Koppelstellen akzeptabel groß.

Allerdings werden auch die Anforderungen an die Szintillatoren immer höher: Teilchendetektoren werden größer und komplexer, die Wege, um Lichtsignale aus einem Detektor herauszuleiten, werden länger. Zudem sind in der aktuellen Hochenergiephysik die Teilchenenergien und -kollisionsraten so hoch, dass die Detektorkomponenten zum Teil sehr hohe Dosen an Untergrundstrahlung und an Sekundärteilchen erleiden, insbesondere wenn sie sehr nahe am Teilchenstrahlrohr platziert sind. Als Beispiel soll hier der 6 Meter-Tagger genannt werden, eine Komponente des ZEUS-Detektors, der am HERA-Speicherring (Hadron-Elektron-Ringanlage) am Deutschen Elektronen-Synchrotron DESY in Hamburg steht. Mit dem ZEUS-Detektor werden Elektron-Proton-Kollisionen mit einer Schwerpunktenergie von $\sqrt{s} = 318\,\mathrm{GeV}$, entsprechend 920-GeV-Protonen und 27,5-GeV-Elektronen vermessen.

In den Jahren 2000/2001 hat es einen umfassenden Umbau des HERA-Ringes gegeben, das sogenannte „Lumi-Upgrade“. Die Strahlfokussierung an den Experimenten wurde verbessert, so dass die Stirnfläche des Strahls auf ein Drittel des bisherigen Werts verkleinert wird. Dadurch kommt es zu einer Vervierfachung der Ereignisrate, was durch verbesserte Statistik Zugang zu extrem seltenen Prozessen eröffnet, jedoch an die Detektoren ebenfalls erhöhte Ansprüche stellt. So wurde der ZEUS-Detektor stark modifiziert, neue Komponenten, z. B. zur Messung der Luminosität, sind hinzugekommen. Zu diesen zählt der 6 m-Tagger, ein kompaktes Wolfram-Szintillator-Spaghetti-Kalorimeter, welches ca. sechs Meter vom Wechselwirkungspunkt des ZEUS-Detektors sehr strahlrohrnah innerhalb eines Fokussiermagneten platziert ist. Die geschätzte Dosisleistung, der diese Komponente ausgesetzt ist, liegt bei 10–20 kGy pro Jahr. Diese wird jedoch zeitlich sehr ungleichmäßig verteilt sein, je nach Status des Speicherrings.

Um die laufend anwachsenden Anforderungen zu erfüllen, ist ein Bestreben im Detektorbau, die eingesetzten Szintillatormaterialien sehr strahlenhart zu machen, was jedoch allein aufgrund der chemischen Struktur nur bedingt erfolgreich sein kann.

Ein weiteres Ziel ist das Verständnis des Einflusses einer im Detektor deponierten Strahlendosis auf sein Verhalten, speziell auf das Messergebnis, das er liefert. Zu diesem Zweck ist ein Experiment zum Test von Polymeren entwickelt worden, welches es erlaubt, gleichzeitig Szintillatorfasern mit Röntgenstrahlung zu schädigen und spektral ihre optische Transmission zu beobachten. Mit hoher Zeitauflösung können hier kurz- wie langfristige Absorptionsentwicklungen im Material verfolgt werden und die Auswirkungen auf den Einsatz dieser Fasern im Detektor, insbesondere auf die Absorption von Szintillationslicht, abgeschätzt werden. Diese Arbeit soll die Ergebnisse für einige untersuchte Szintillatoren und Lichtleiter vorstellen. In Kapitel 2 wird kurz aufgezeigt, welche Relevanz die Untersuchungsergebnisse für aktuelle und zukünftige Detektoren haben. In Kap. 3 folgt ein Überblick über die untersuchten Materialien und die Auswirkungen der für die Experimente verwendeten Röntgenstrahlung. In Kap. 4 werden die zugrunde liegenden Kinetiken der Absorptionsentwicklungen dargestellt. Kap. 5 beschreibt einige spezielle Eigenschaften des für die Tests genutzten Experimentieraufbaus, bevor in Kap. 6 die Ergebnisse der Untersuchungen zu finden sind.

Kapitel 2

Relevanz der Untersuchungsergebnisse

Eine Grundvoraussetzung für die Messung einer Größe ist die Verlässlichkeit und gute Kenntnis des Messgeräts. In Szintillator-Kalorimetern ist dabei für eine aussagekräftige Messung sowohl eine hohe Lichtausbeute der Szintillatoren entscheidend, die eine hohe Energieauflösung ermöglicht, als auch eine von äußeren Einflüssen möglichst unabhängige zuverlässige Antwort des Detektors über lange Betriebszeiten. Beide Eigenschaften können durch im Teilchendetektor vorhandene Untergrundstrahlung verändert werden. Die Untersuchung des Strahlenverhaltens von Plastikszintillatoren in Faser- und Plattenform ist deshalb für alle sie verwendenden Experimente von Belang.

Um einen dauerhaft sicheren Einsatz zu gewährleisten und die gewünschte Gewissheit der Informationen über Teilchenenergien zu erzielen, müssen einerseits vor dem endgültigen Design des Detektors Daten zur Lichtausbeute, Geometrie, Strahlenresistenz und vieles mehr gesammelt werden. Andererseits werden während des Betriebs laufend Tests durchgeführt, die eine Veränderung des Detektors aufnehmen, die z. B. durch den Untergrund ionisierender Strahlung hervorgerufen wird.

2.1 Der 6 m-Tagger am ZEUS-Experiment

Die hier vorliegende Arbeit hatte Einfluss auf die Auswahl der Fasern für den sog. 6 m-Tagger des ZEUS-Experiments am HERA-Speicherring. Es handelt sich hierbei um ein Wolfram-Szintillator-Spaghetti-Kalorimeter von sehr kleinen Ausmaßen. Der in einem Fokussiermagnet direkt am Strahlrohr etwa sechs Meter vom Wechselwirkungspunkt des ZEUS-Detektors entfernt platzierte Tagger (Abb. 2.1) ist 10 (L) × 8,5 (B) × 2,4 (H) cm^3 groß und besteht aus geschichteten Wolfram-Platten als Absorber, in die Nuten für insgesamt 1890 Szintillatorfasern von 0,5 mm Durchmesser gefräst sind. Die Szintillatoren werden in Segmenten zu je 27 Fasern gebündelt nach einer Strecke von ca. 1,5 Metern ausgelesen.

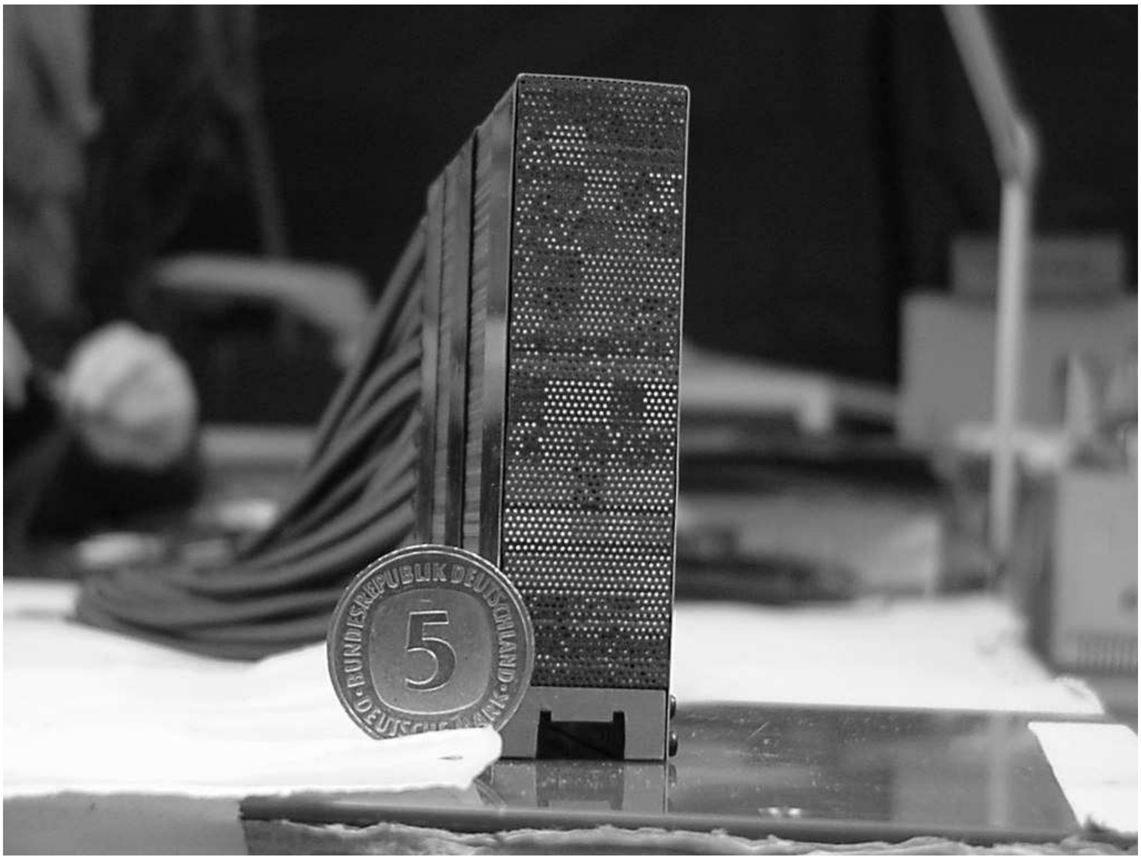

Abbildung 2.1: *Frontansicht des 6 m-Taggers, wie er am ZEUS-Detektor eingesetzt wird (dort waagerecht eingebaut). Vorn sind die Stirnflächen der eingesetzten Fasern sichtbar, nach hinten werden die Faserbündel in Hüllen abgeführt. Zum Größenvergleich eine 5-DM-Münze.*

Messung der Luminosität

Der 6 m-Tagger ist Teil des Luminositätsmesssystems des ZEUS-Detektors, das im Zuge der Erhöhung der Gesamtluminosität des HERA-Speicherrings komplett umgestaltet wurde. Die Luminosität entspricht der Teilchenstromdichte eines Speicherrings und ist somit ein Maß für die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung. Um den Wirkungsquerschnitt σ eines bestimmten Prozesses zu bestimmen, benötigt man die Luminosität $\mathcal{L}$ sowie die Ereignisrate $\dot{N}$ für diesen Prozess:

$$\sigma = \frac{\dot{N}}{\mathcal{L}} \quad . \tag{2.1}$$

Bei ZEUS wird die Luminosität über die Ereignisrate des Bethe-Heitler-Bremsstrahlungsprozesses

$$e\,p \to e\,p\,\gamma \tag{2.2}$$

bestimmt, dessen Wirkungsquerschnitt sich mit einer Genauigkeit von 0,5 % berechnen lässt [GVH89] und der mit einer ausreichend hohen Rate auftritt.

Dieser Prozess, bei dem das Elektron im Feld des Protons unter Abgabe eines Bremsstrahlungsquants unter kleinen Winkeln abgelenkt wird, wird mit Hilfe von drei Detektorkomponenten vermessen:

- dem Photonenkalorimeter, einem Blei-Szintillator-Sandwich-Kalorimeter, welches das emittierte Photon detektiert;
- dem Elektron-Positron-Paar-Spektrometer, einem Wolfram-Szintillator-Sandwich, welches aus Paarproduktion einiger Bethe-Heitler-Photonen entstehende e^+e^--Paare vermisst; und schließlich
- dem 6 m-Tagger, der die Aufgabe hat, Ort und Energie des abgelenkten Elektrons zu bestimmen. Dabei hat er für 5–9 GeV Elektronen eine annähernd 100-prozentige Akzeptanz [ZEU99].

Mit Hilfe dieses Messsystems soll die Luminosität mit Unsicherheiten von weniger als 2 % bestimmt werden. Um diese Präzision zu erhalten, sind an den 6 m-Tagger hohe Anforderungen gestellt. Unter anderem ist die Strahlenhärte der Szintillatorfasern sehr wichtig. Der Tagger befindet sich direkt neben dem Strahlrohr und nahe am Detektor in einem Bereich, in dem durch hohe Ablenkmagnetfelder zur Fokussierung der Teilchenstrahlen im Speicherring große Mengen an Synchrotronstrahlung auftreten. Außerdem wird mit einer hohen Dosis durch aufschauernde Teilchen aus Elektron-Restgas-Ereignissen gerechnet. Die akkumulierte Dosis, der diese Detektorkomponente ausgesetzt ist, wird mit bis zu einigen 10 kGy pro Jahr, entsprechend einigen Gray pro Stunde bei konstanter Dosisleistung abgeschätzt. Für einen längerfristigen Betrieb ist also eine sehr strahlenresistente Faser erforderlich, die wenig permanente Absorption und möglichst keine kurzlebige Absorption im Fluoreszenzbereich aufbaut.

2.2 Das ZEUS-Kalorimeter

Der ZEUS-Detektor besteht aus verschiedenen Subkomponenten, die die Aufgabe haben, so viele Informationen wie möglich über die Streuteilchen eines Lepton-Proton-Stoßes zu sammeln. Einer der größten Subdetektoren ist das Uran-Szintillator-Sandwich-Kalorimeter des Detektors, das 99,8 % des Raumwinkels um den Wechselwirkungspunkt abdeckt. Als Nachweismaterial wurde der plattenförmige Szintillator SCSN-38 der Firma Kuraray verwendet. Das Kalorimeter ist in die drei Bereiche Barrel- (BCAL), Front- (FCAL) und Rear-Kalorimeter (RCAL) unterteilt. Die Nomenklatur baut dabei auf die Bewegungsrichtung des Protons bzw. des Systemschwerpunkts auf. Die dicht am Strahlrohr angeordneten Komponenten des RCAL und FCAL erleiden im Betrieb die höchste Dosis an Untergrundstrahlung.

Um diese Kalorimeterkomponenten, die seit mittlerweile 10 Jahren im Einsatz sind, auf ihre Zuverlässigkeit zu prüfen, werden regelmäßige Tests des gesamten Messsystems mit Hilfe einer Anregung der Szintillatoren durch ein ^{60}Co-Präparat durchgeführt. Bei diesen Untersuchungen wurden höhere Schädigungen des Szintillatormaterials festgestellt als beim Bau des Detektors aus Voruntersuchungen abgeschätzt worden waren [Boh99]. Für diese Abschätzung ist man in Strahlenresistenztests, die vor Einsatz der Szintillatorplatten durchgeführt wurden, davon ausgegangen, dass sich der im ZEUS-Betrieb zu erwartende Strahlenschaden, der sich in einer Verschlechterung der Transmission niederschlägt, linear mit der applizierten Dosis aufsummiert. Die Untersuchungen in [Boh99] weisen darauf hin, dass bei niedrigen Dosen ein relativ höherer optischer Strahlenschaden auftritt als bei hohen.

Ein Ziel der hier vorliegenden Untersuchungen ist es, das Schädigungsverhalten von Szintillatoren mit ansteigender Dosis zu untersuchen, um für zukünftige Detektoren eine verbesserte Schädigungsabschätzung durchführen zu können. Dazu wurde hier die Faser SCSF-38 untersucht, die aus den gleichen Grundstoffen wie SCSN-38 aufgebaut ist.

Kapitel 3

Auswirkung von Röntgenstrahlung auf Kunststoffszintillatoren

3.1 Eigenschaften der untersuchten Fasern

Die zur Energiebestimmung in Detektoren verwendeten Szintillatorfasern übernehmen mehrere Aufgaben:

Sie wandeln zum Ersten über den Szintillationsprozess in ihnen deponierte Energie in Licht, meist im UV-Bereich um. Dieser Prozess wird durch Farbstoffe, die in ppm- bis zu Prozent-Konzentrationen beigefügt sind, unterstützt.

Zum Zweiten haben weitere den Szintillatoren zugesetzte Farbstoffe die Aufgabe, das entstehende Szintillations- bzw. Fluoreszenzlicht zu absorbieren und die Energie mit Hilfe des Stokes-Shifts als Licht größerer Wellenlängen wieder zu emittieren. Um den Selbstabsorptionseffekt dieser spektralen Umsetzung nicht zu groß werden zu lassen, werden diese Zweit- und Dritt-Farbstoffe nur in ppm-Konzentrationen beigefügt. Das entstehende längerwellige Licht bietet den Vorteil, dass es weniger stark im Material absorbiert wird. Zudem kann es mit relativ einfachen Photomultipliern ausgelesen werden.

Die dritte nicht unwesentliche Eigenschaft von Szintillatorfasern ist die Fähigkeit, das Fluoreszenzlicht über Totalreflexion in ihrem Kern vom Ort der Entstehung zum Ausleseort zu transportieren. Für sehr lange Strecken werden hierfür auch klare Lichtleitfasern ohne Farbstoffe verwendet, die an die Szintillatoren angeschlossen werden; für kürzere Wege bis hin zu einigen Metern wird das Licht in der Szintillatorfaser selbst transportiert. Um die Totalreflexion zu gewährleisten und zugleich den Kern vor äußeren mechanischen Schäden zu schützen, sind alle untersuchten Fasern von einem Schutzmantel, dem sog. Cladding umgeben. Er besitzt einen niedrigeren Brechungsindex als der Faserkern. Die Dicke des Claddings beträgt bei allen hier untersuchten Fasern 3 % ihres Durchmessers.

Der Grundstoff für viele Szintillator- und Lichtleitfasern ist Polystyrol (PS). Für Wellenlängenschieber und Lichtleiter wird auch Polymethylmethacrylat (PMMA) verwendet. Die chemischen Strukturformeln beider Polymere sind in Abb. 3.1 zu sehen.

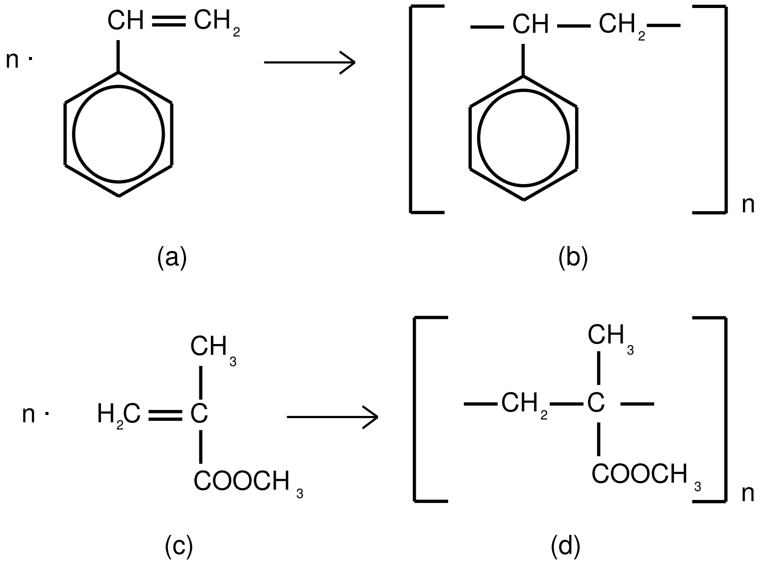

Abbildung 3.1: *Chemische Strukturformeln der Grundstoffe der untersuchten Fasern Polystyrol (b) und PMMA (d) (ohne Endglieder) sowie deren Monomere Styren (a) und Methylmethacrylat (c).*

Polystyrol findet seine Anwendung in Teilchendetektoren, weil es als sehr strahlenresistent gilt. Durch die delokalisierten Elektronen im Benzolring ist der Stoff in der Lage, hier größere Mengen von Strahlungsenergie aufzunehmen, die dann nicht mehr zur Produktion von Kettenbrüchen oder anderen radikalischen Stellen zur Verfügung steht (vgl. Abschnitte 3.3, 3.3.3). Zudem szintilliert Polystyrol selbst. Es emittiert UV-Licht bei einem Maximum von 332 nm und setzt so einen Teil der deponierten Energie in Fluoreszenzlicht um. Allerdings ist die Ausbeute dieser Umwandlung sehr gering, so dass auch in PS-basierten Fasern für eine ausreichende Fluoreszenzlichtausbeute stets Farbstoffe beigemengt werden[1]. Als weiterer großer Vorteil zeigt sich, dass Sauerstoff, der in der Lage ist, Strahlenschäden zu reduzieren (vgl. Abschnitt 6.2.1), schnell in Polystyrol diffundieren kann. PMMA hingegen lässt eine Diffusion von Sauerstoff im Polymer nur sehr begrenzt zu und baut einen Strahlenschaden deshalb nur langsam ab.

Beide Grundstoffe werden durch Polymerisation von Styren bzw. Methylmethacrylat erzeugt, in Faserform gezogen und mit einem Cladding umgeben, das bei PS-Fasern in der Regel aus PMMA besteht, bei PMMA-Fasern aus Fluoropolymeren. Das Cladding hat jeweils einen niedrigeren Brechungsindex als das Kernmaterial, so dass eine Totalreflexion zum Lichttransport möglich ist.

Der Aufbau und die Funktion einer Szintillatorfaser ist in Abb. 3.2 am Beispiel einer Polystyrolfaser dargestellt, die von einem PMMA-Cladding umgeben ist: Ein ionisierendes Teilchen erzeugt im Szintillator Licht, das isotrop emittiert wird. Erfolgt die Emission innerhalb eines Kegels mit Öffnungswinkel φ in Richtung der Faserachse, kann das Licht durch Totalreflexion an der Grenzschicht Kern – Cladding in der

---

[1] Das integrale Fluoreszenzlicht trifft im hier verwendeten Experimentalaufbau als Untergrundsignal auf den Photomultiplier. Dabei ist die Lichtintensität von klarem PS stets um 1–2 Größenordnungen kleiner als die Ausbeute von Szintillatoren.

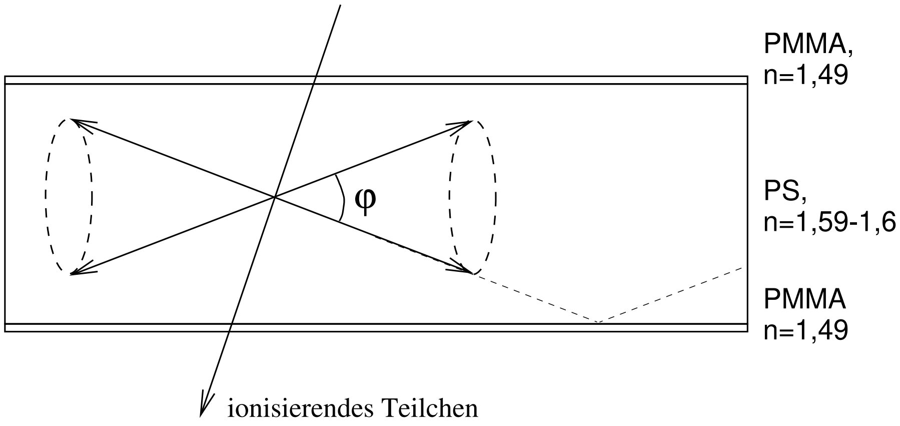

Abbildung 3.2: *Aufbau einer Szintillatorfaser. Im Szintillationsprozess entstehendes Licht kann innerhalb eines Winkels φ durch Totalreflexion in der Faser transportiert werden.*

Faser weitertransportiert werden. Licht außerhalb dieses Kegels geht verloren. Der Winkel φ hängt von den Brechungsindizes der Materialien in Kern und Cladding ab.

Oftmals werden Fasern mit zwei übereinanderliegenden Mantelschichten mit nach außen hin sinkendem Brechungsindex ausgestattet. Bei diesen Fasern mit doppeltem Cladding wird auch Licht im inneren Cladding weitergeleitet, das dann am äußeren Cladding totalreflektiert wird. Die Lichtausbeute erhöht sich dadurch etwas, weswegen diese doppelt ummantelten Fasern häufig verwendet werden. Für Untersuchungen von Strahlenschäden allerdings eignet sich dieser Fasertyp nicht, da im Experiment nicht zwischen Licht, das im Cladding transportiert wird, und Licht, welches durch den Faserkern läuft, unterschieden werden kann. So können Effekte durch Strahlung, die im Cladding entstehen, nicht von solchen getrennt werden, die im Faserkern hervorgerufen werden. Fasern mit doppeltem Cladding wurden daher nicht untersucht.

Bei den untersuchten Fasern wurde zur zusätzlichen Unterdrückung des Lichtes, welches sich im Cladding ausbreitet, der Fasermantel an den Enden von außen geschwärzt. Eine Schwärzung der Enden auf ca. zwei Zentimeter Länge ist dabei nach [GRO95] zur vollständigen Ausblendung des Mantellichtes ausreichend. Somit kann nicht nur ein Strahlenschädigungseffekt durch das Cladding ausgeschlossen werden, sondern auch eine Beeinträchtigung der Messergebnisse durch eine mechanische Beschädigung des Claddings.

Die für diese Arbeit untersuchten Fasern sind zwei Lichtleiter und vier Szintillatoren in runder Bauform. Die Lichtleitfasern sollten dabei als klare Lichtleiter ohne zugesetzte Farbstoffe einen recht hohen Reinheitsgrad aufweisen. Damit würden Untersuchungen ermöglicht, deren Ergebnisse sich allein auf die Polymermatrix zurückführen lassen. Dies ist hier gerade im Falle des Polystyrols von Interesse, da es die Grundmatrix für alle untersuchten Szintillatoren bildet.

Allerdings sind auch diese „reinen“ Fasern mit Verunreinigungen versehen. Dies hat verschiedene Gründe: Einerseits können Rückstände des für die Polymerisation eingesetzten Initiators vorhanden sein. Bei der allgemein angewendeten radikalischen Polymerisation mit einem ionischen Initiator kommen Einflüsse durch die Initiatorkonzentration und -art, Polymerisationstemperatur und -atmosphäre, Monomerreinheit etc. zum Tragen. Sie haben Einfluss auf die durchschnittliche Kettenlänge und so auf die optischen wie mechanischen Eigenschaften des Polymers.

Andererseits versetzen die Hersteller häufig gezielt ihre Kunststoffe mit Zusätzen, die eine erhöhte Strahlenresistenz bzw. Lebensdauer versprechen. Das sind z. B. „UV-Absorber“: Diese Verbindungen absorbieren Licht im UV-Bereich, welches in der Lage ist, chemische Bindungen in Kohlenwasserstoffen aufzubrechen. So sollen sie Strahlenschäden am Basismaterial verhindern. Sog. „Antioxidanzien“ (häufig phenolische Kohlenwasserstoffe) sollen einen Strahlenschaden vermindern, indem sie durch Strahlungseinfluss entstandene Radikale einfangen. Sie geben dabei z. B. ein Wasserstoffatom an hochreaktive Radikale ab, während sie selbst in diesem Prozess eine radikalische Stelle von höherer Stabilität bilden. Die primär entstehenden Radikale sind somit nicht mehr reaktionsfähig. Andere Verbindungen, insbesondere polyzyklische aromatische Komponenten (sog. „Antirads“) werden zugesetzt, um eine durch Strahlung deponierte Energie lokal zu verwerten. Sie haben häufig einen Bereich von Anregungsenergien, die strahlend oder strahlungslos in den Grundzustand übergehen, wobei die absorbierte Energie in so kleinen Teilen wieder freigesetzt wird, dass sie für einen Bindungsbruch nicht mehr ausreicht.

Aus Wettbewerbsgründen werden diese Zusätze und deren Anteile in der Regel geheimgehalten. Sie können allerdings auch in kleinsten Mengen das spektrale Absorptionsverhalten bei Strahlenschädigung eklatant verändern (z. B. [BPHM94]).

Darüber hinaus gibt es verschiedene Techniken der Herstellung des Polymers, die nur selten angegeben werden. Eine bekannte praktizierte Technik ist z. B. die Ausrichtung der Makromoleküle entlang der Faserachse, um die mechanische Stabilität der Szintillatoren zu erhöhen. Dies geht allerdings auf Kosten der Abschwächlänge für das transportierte Licht, die bei isotrop verteilten Polymerketten um ca. 10 % höher ist.

Diese verschiedenen Eigenschaften der Fasern lassen eine Vergleichbarkeit von Polymerfasern unterschiedlicher Herkunft trotz gleicher Grundstoffe nur schwer zu. Für Tests zu konkreten Einsätzen von Lichtleitern muss deshalb auch ein direkter Vergleich von „reinen“ Lichtleitfasern verschiedener Hersteller herangezogen werden.

Die untersuchten Fasern sowie einige ihrer speziellen Eigenschaften sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden. Abbildungen zu den Transmissionsdaten der Lichtleiter bzw. Fluoreszenzspektren der Szintillatoren sind in Anhang A zu sehen.

Die Lichtleitfaser BCF-98

BCF-98 vom Hersteller Bicron[2] ist ein klarer Lichtleiter aus dem Basisstoff Polystyrol mit einfachem PMMA-Cladding. Die untersuchten Faserdurchmesser betragen ein und zwei Millimeter. Der Brechungsindex des Kernmaterials aller Bicron-Fasern wird vom Hersteller mit $n_{\mathrm{PS}} = 1{,}60$, der des Mantels mit $n_{\mathrm{PMMA}} = 1{,}49$ angegeben.

---

[2] Bicron, 12345 Kinsman Road, Newbury, Ohio, USA

Damit liegt der Öffnungswinkel für Totalreflexion (s. Abb. 3.2) bei $\varphi = 42{,}8°$. Da die Brechungsindizes wellenlängenabhängig sind, ist die Angabe ein Mittelwert für das Spektrum des in diesen Fasern transportierten Szintillationslichtes.

Der blaue Szintillator SCSF-38

Der Szintillator SCSF-38 der Firma Kuraray[3] besteht aus einer PS-Matrix, der zwei Farbstoffe beigemischt sind, der sog. „1. Fluor“ b-PBD (1 % Anteil) und der „2. Fluor“ BDB (0,2 ‰). Während der erste Farbstoff vorwiegend für eine hohe Fluoreszenzlichtausbeute sorgt, schiebt der zweite das Wellenlängenband des Fluoreszenzlichtes in den blauen Bereich. Die Wellenlänge der Fluoreszenz reicht von 400 bis 520 nm mit einem Maximum bei 428 nm. Das Emissionsband von SCSF-38 sowie die Absorptions- und Emissionsspektren der Farbstoffe sind in Anhang A zu sehen.

Die Brechungsindizes der verwendeten Grundstoffe werden von Kuraray für Polystyrol mit $n_{\mathrm{PS}} = 1{,}59$ und PMMA mit $n_{\mathrm{PMMA}} = 1{,}49$ angegeben, so dass der aktive Öffnungswinkel, wie in Abb. 3.2 dargestellt, $\varphi = 40{,}8°$ beträgt. Wird das Claddinglicht unterdrückt, d. h. eine Totalreflexion an der Grenzschicht Cladding – Luft vernachlässigt, kann so 3,14 % des isotrop emittierten Lichtes in der Faser in Richtung Photomultiplier transportiert werden, wenn das Szintillationsereignis in der Mitte der Faser stattfindet. Für außen liegende Emissionsorte liegt die Effizienz höher. Die Abschwächlänge der SCSF-38-Faser, d. h. die Länge, nach der die Lichtintensität auf $1/e$ abgefallen ist, wird mit > 3 m angegeben. Das ist ein durchschnittlicher Wert für das Szintillationsspektrum. Dabei werden kürzere Wellenlängen vom Basismaterial stärker absorbiert als lange, wodurch sich das Spektrum des Fluoreszenzlichtes nach Durchschreiten einer Strecke durch die Faser ändert. Dies gilt für alle untersuchten Szintillatoren. Von dieser Fasersorte wurden Proben mit 2 mm Durchmesser untersucht.

Der blaue Szintillator SCSF-81

Dieser Szintillator vom selben Hersteller besteht ebenfalls aus einem PS-Kern, der von einem PMMA-Mantel umgeben ist. Die zugemischten Szintillator- und Wellenlängenschieber-Farbstoffe sind 1 % PHB und 0,02 % TBBT. Er emittiert damit ein breites Wellenlängenband, das von 410 bis 550 nm reicht und dessen Fluoreszenzmaximum bei 437 nm liegt, also etwas höher als bei SCSF-38. In diesem Bereich sinkt die Absorption des Lichtes durch die PS-Matrix, die Abschwächlänge wird größer. Sie wird für diese Faser von Kuraray mit $> 3{,}5$ m angegeben. Die untersuchten Fasern dieses Typs haben 1 mm Durchmesser.

Der grüne Szintillator SCSF-81(Y7)

Häufig werden in Szintillatoren zusätzliche Wellenlängenschieber beigemischt, um das entstehende Licht in den grünen Bereich zu transferieren. Der technische Vorteil besteht darin, dass das Licht so in einem höher gelegenen Wellenlängenband

---

[3] Kuraray Co., Ltd., 8F, Maruzen Building, 3-10, 2-Chome, Nihonbashi, Chuo-ku, Tokyo, 103-0027, Japan

transportiert wird. Hier wird durch im Experiment zu erwartende Strahlenschäden des Fasermaterials nur wenig an zusätzlicher Absorption aufgebaut. Das primäre Szintillationslicht, welches nach wie vor im UV-Bereich entsteht, wird praktisch am Ort der Entstehung in grünes Licht verwandelt, welches dann über größere Strecken durch die Faser transportiert wird. Somit ist der Lichttransport in der Faser durch strahleninduzierte Absorption nur wenig beeinträchtigt. Das geschieht auf Kosten der absoluten Lichtausbeute, denn die Umsetzung des Lichtes durch einen weiteren Farbstoff ins Grüne ist ineffizient. Um Selbstabsorption zu vermeiden, können diese Farbstoffe nur in sehr geringen Konzentrationen beigemengt werden.

Einer der Farbstoffe, die diese Farbumsetzung durchführen, ist der Zusatz Y7. Er ist der Faser SCSF-81(Y7) zu 60 bis 100 ppm beigefügt und befördert das blaue Spektrum der SCSF-81 in ein grünes Fluoreszenzband, das von 480 nm über ein Maximum bei 515 nm bis hin zu 640 nm reicht (Spektrum einer Faser mit Wellenlängenschieber Y7 s. Abb. A.5). Die Abschwächlänge der Faser liegt bei $> 3\,\mathrm{m}$. Es wurden Fasern von 1 mm Durchmesser untersucht.

Der grüne Szintillator BCF-60

Ein weiterer Farbstoff, der die Faser grün szintillieren lässt, ist 3HF (3-Hydroxy-Flavon). Die Spektren seiner Absorption und Emission liegen weit auseinander, die Stokes-Verschiebung ist sehr groß. Er ist in der Lage, UV-Licht direkt in grünes Licht umzuwandeln und bietet so zum einen den Vorteil, dass die Szintillationslichtausbeute nur von diesem einzigen Farbstoff abhängt, der als sehr strahlenresistent gilt. Zum anderen gilt wie für alle grün emittierenden Fasern der bereits erwähnte Vorteil, dass eine Absorption der Grundmatrix in diesem Wellenlängenbereich nur bei sehr großen Strahlenschäden stattfindet und so im Experiment nicht zu erwarten ist. Allerdings ist die Lichtausbeute des Farbstoffs recht schwach.

Die Faser BCF-60 von Bicron ist mit diesem Wellenlängenschieber-Farbstoff versehen, wiederum eingebettet in eine PS-Matrix und umgeben von einem PMMA-Mantel. Wahrscheinlich ist in dieser Faser nicht allein das Polystyrol als primärer Szintillator tätig, sondern es ist ein Farbstoff enthalten, der die Quantenausbeute der primären Szintillation effektiv macht; er ist nicht angegeben[4]. Bicron gibt den Brechungsindex seines Polystyrols mit $n_{\mathrm{PS}} = 1{,}60$ an, so dass der für eine Totalreflexion gültige Öffnungswinkel des Szintillationslichtkegels (Abb. 3.2) bei 42,8° liegt. Somit erhöht sich der Anteil des in Faserrichtung transportierten Szintillationslichtes im Vergleich zu den Kuraray-Fasern auf 3,44 %.

Die grüne Fluoreszenz reicht in dieser Faser von 480 bis 655 nm mit einem Maximum bei 530 nm. Die Abschwächlänge für das Fluoreszenzlicht liegt laut Hersteller über 3,5 Meter. Der Durchmesser der untersuchten Fasern beträgt 1 mm.

3HF-Fasern haben generell die Schwäche, sehr empfindlich gegen jede Form von Licht, auch Tageslicht zu sein. Bereits eine kurzfristige Bestrahlung mit Tageslicht kann die Lichtausbeute um große Beträge verändern, auch die Transmissionswerte sind nicht stabil [Lat01]. Experimente der Firma Kuraray ergaben für eine 3HF-Faser

---

[4] Häufig wird in 3HF-Fasern p-Terphenyl (pT) als primärer Szintillator eingesetzt.

bei Bestrahlung mit einer Leuchtstoffröhre einen Abfall der Abschwächlänge um ca. 50 % nach 48 Stunden. In derselben Zeit ging die Primärlichtausbeute um etwa 35 % zurück [Yag99]. [Chu93] testete den Einfluss von weißem und Fluoreszenzlicht auf verschiedene 3HF-Fasern. Es zeigten sich starke Einflüsse auf die Abschwächlänge, kleinere auf die Primärlichtausbeute. Die Größe der Transmissionseffekte ist dabei laut [Chu93] proportional zum Logarithmus der 3HF-Konzentration in der Faser. Der Einfluss von Fluoreszenzlicht war bei gleicher Bestrahlungsintensität etwa doppelt so groß wie der von weißem Licht. Sind die Schäden nur gering, heilt die Faser nach Lichtbehandlung vollständig aus, bei intensiverer Beleuchtung bleibt ein permanenter Absorptionsschaden zurück. Blaue und klare Vergleichsfasern ohne 3HF blieben bei der Behandlung in [Chu93] stabil, während in [Lat01] für die Faser SCSF-81 ebenfalls eine Lichtempfindlichkeit verzeichnet wurde.

Bei Experimenten mit der 3HF-Faser BCF-60 sollte eine Präparation im Dunkellabor erfolgen. Eine Beleuchtung mit Wellenlängen unter 520 nm muss vermieden werden. Oberhalb dieser Wellenlängen wurde kein Einfluss auf die 3HF-Fasern nachgewiesen [Chu93].

Die Lichtleitfaser FL-51

Anders als die bisher genannten Fasern ist der Lichtleiter FL-51 der Firma Hoechst[5] aufgebaut. Die unter dem Namen Infolite© firmierende Faser besteht aus einem PMMA-Kern, der von einem Fluoropolymer-Cladding umgeben ist. Sie wurde für den Licht- und Datentransport konstruiert und hat bei Wellenlängen bis zu 600 nm eine sehr kleine Abschwächung (s. Abb. A.7). Da die Produktion dieser Lichtleiter eingestellt wurde, sind keine weiteren Informationen vorhanden. Diese Faser wurde untersucht, um Strahleneffekte in PMMA zu studieren. Sie hat einen Durchmesser von 1,5 mm.

Fasertyp	Matrix	Eigenschaft	Fluoreszenzmaximum	Abschwächlänge λ	$\varnothing$
BCF-98	PS	Lichtleiter	—	s. Abb. A.1	1 mm, 2 mm
SCSF-38	PS	Szintillator	428 nm	$>$ 3,0 m	2 mm
SCSF-81	PS	Szintillator	437 nm	$>$ 3,5 m	1 mm
SCSF-81(Y7)	PS	Szintillator	515 nm	$>$ 3,0 m	1 mm
BCF-60	PS	Szintillator	530 nm	$>$ 3,5 m	1 mm
FL-51	PMMA	Lichtleiter	—	s. Abb. A.7	1,5 mm

Tabelle 3.1: *Übersicht über einige Eigenschaften der untersuchten Fasern.*

---

[5] Hoechst AG, D-6230 Frankfurt am Main 80

3.2 Röntgenstrahlung

3.2.1 Entstehung von Röntgenstrahlung

Röntgenstrahlung ist ionisierende Photonenstrahlung, die aus Wechselwirkungsprozessen von beschleunigten Elektronen mit Materie hervorgerufen wird. Sie kann auf zwei Arten entstehen: als Bremsstrahlung und als charakteristische Strahlung.

Röntgenbremsstrahlung

In einer Röntgenröhre werden aus einem Glühfaden emittierte Elektronen im Vakuum durch ein Hochspannungsfeld beschleunigt. Sie prallen auf eine Anode, die häufig aus Wolfram besteht. Dort übertragen sie Energie auf das Anodenmaterial, indem verschiedene Prozesse stattfinden. Zum großen Teil werden die Atome des Anodenstoffs ionisiert oder angeregt, seltener kommt ein beschleunigtes Elektron ins direkte elektrische Feld eines Anodenatomkerns. Aufgrund der elektrischen Anziehung können sie dabei sehr stark abgelenkt („abgebremst“) werden, wobei sie ein Bremsstrahlungsquant aussenden. Je nach Stärke der Ablenkung trägt dieses Röntgenquant eine Energie, die maximal der kinetischen Energie des abgebremsten Elektrons entspricht. So bildet sich ein Energiespektrum von Röntgenstrahlungsphotonen bis hinauf zur Beschleunigungsenergie der Röntgenröhre. Der Wirkungsgrad für die Erzeugung von Bremsstrahlung kann nach [Dys90] aus der Hochspannung und der Ordnungszahl des Anodenmaterials abgeschätzt werden:

$$\eta \approx 10^{-6} \cdot Z \cdot \frac{U}{\mathrm{kV}} \quad . \tag{3.1}$$

Für eine Röntgenröhre mit 100 kV Beschleunigungsspannung und Wolfram ($Z = 74$) als Anodenmaterial ergibt sich ein Wirkungsgrad von drei viertel Prozent.

Ist die Anode so dick, dass die beschleunigten Elektronen vollständig absorbiert werden, also mehrfache Ablenkung der Elektronen möglich ist, so kann für das Spektrum der Photonenfrequenzen nach [MB93] ein linearer Zusammenhang angesetzt werden, nach dem die Intensitätsverteilung linear mit der Frequenz der Bremsstrahlungsquanten abnimmt:

$$I(\nu) \approx C \cdot Z \, (\nu_{\max} - \nu) \tag{3.2}$$

$$C = \frac{8\,\pi}{3\,\sqrt{3}\,l} \cdot \frac{h\,Z\,e^2}{c^3\,m_e} \quad .$$

Der Faktor C enthält unter anderem den numerischen Faktor l mit einem Wert um 6 und Z, die Ordnungszahl des Anodenmaterials. Dieser Zusammenhang wurde für einen Abstrahlwinkel von 90° zum einfallenden Elektronenstrahl experimentell bestätigt [Dys90]. Für die Energieverteilung $I(E)$ wird Gl. 3.2 zu:

$$I(E) = \frac{C}{h^2} \cdot Z \cdot (E_{\max} - E) \quad . \tag{3.3}$$

Das nach dieser Gleichung dargestellte Energiespektrum ist zusammen mit dem Anteil der charakteristischen Röntgenstrahlung als unterbrochene Linie in Abb. 3.3 ersichtlich.

Charakteristische Röntgenstrahlung

Bei der Entstehung von charakteristischer Röntgenstrahlung wird vom beschleunigten Elektron ein Anodenatom ionisiert, indem ein kernnahes Hüllenelektron aus seiner Schale geschlagen wird. Sie tritt nur auf, wenn die kinetische Energie des eintreffenden Elektrons die jeweilige Bindungsenergie des Hüllenelektrons übersteigt. Eine Rekombination erfolgt, indem ein Elektron aus einer höheren Schale auf die K- bzw. L-Schale zurückfällt und dabei ein Photon emittiert. Da dieses Photon die Energiedifferenz der übersprungenen Schalen mit sich trägt, ist diese Strahlung charakteristisch für das Anodenmaterial. Man spricht je nach Übergang von K_α-Strahlung, wenn der Übergang aus der L-Schale in die K-Schale erfolgt, und K_β-Strahlung, wenn die Abregung aus einer höheren Schale stattfindet; entsprechend mit der L-Schale L_α, L_β. Dabei sind die Übergänge durch Auswahlregeln eingegrenzt, was durch einen Index kenntlich gemacht wird.

Die Energie der charakteristischen Röntgenstrahlung hängt so allein von der Lage der Energieniveaus im Anodenmaterial ab; es ergeben sich scharfe Linien im Energiespektrum, deren Breite nach der Heisenbergschen Unschärferelation von der Lebensdauer des Übergangs abhängt. Der Anteil der charakteristischen Röntgenstrahlung am Gesamtspektrum hängt von der Beschleunigungsspannung der verwendeten Röhre ab und liegt für die verwendete 100-kV-Röhre mit Wolframanode für K_α-Strahlung bei ca. 3 % [Dys90], wobei die K_α-Linien am ausgeprägtesten sind. Die relativen Anteile der charakteristischen Übergänge sind in Tab. 3.2 aufgeführt.

Übergang	Energie (keV)	rel. Intensität
$K_{\alpha 1}$	59,32	50,5
$K_{\alpha 2}$	57,98	29
$K_{\beta 1}$	67,24	11
$K_{\beta 2}$	69,1 69,0	4
$K_{\beta 3}$	66,95	5,5
		$\Sigma = 100$

Tabelle 3.2: *Relative Intensitäten der charakteristischen Röntgenstrahlung für Wolfram nach [PK92].*

Verwertbares Spektrum

Das verwertbare Spektrum einer Röntgenanlage hängt nicht nur von der Entstehung der Strahlung ab, sondern ebenfalls von der Filterung. Die Röntgenröhre besteht aus einem statischen Vakuum in einer Glasröhre, das die Photonen verlassen müssen, bevor sie genutzt werden. Der größte Teil der Anode, von der aus sich die Röntgenstrahlung nahezu isotrop ausbreitet, ist durch einen Kupfermantel vollständig abgeschirmt. Strahlung tritt nur durch ein kleines Fenster aus. Um den Anteil der niederenergetischen Photonen zu reduzieren, wird die Röntgenstrahlung in der hier verwendeten Röhre zusätzlich durch einen Beryllium- und einen Aluminium-Filter von 1 bzw. 2 mm Dicke gesandt. Danach tritt die Strahlung an die Umgebungsluft. Ab hier wird sie bis zur Nutzung nur noch durch die Luft selbst abgeschwächt. Ein mit der Software PHOTCOEF©[6] berechnetes Intensitätsspektrum der Röntgenstrahlung in 20 cm Abstand von der verwendeten 100-kV-Röhre ist in Abb. 3.3 zu sehen. Ausgangsspektrum hierfür ist die Summe der Bremsstrahlungsintensität nach Gl. 3.3 und der zusätzlichen Intensitäten der charakteristischen Übergänge. Es ist unterbrochen eingezeichnet.

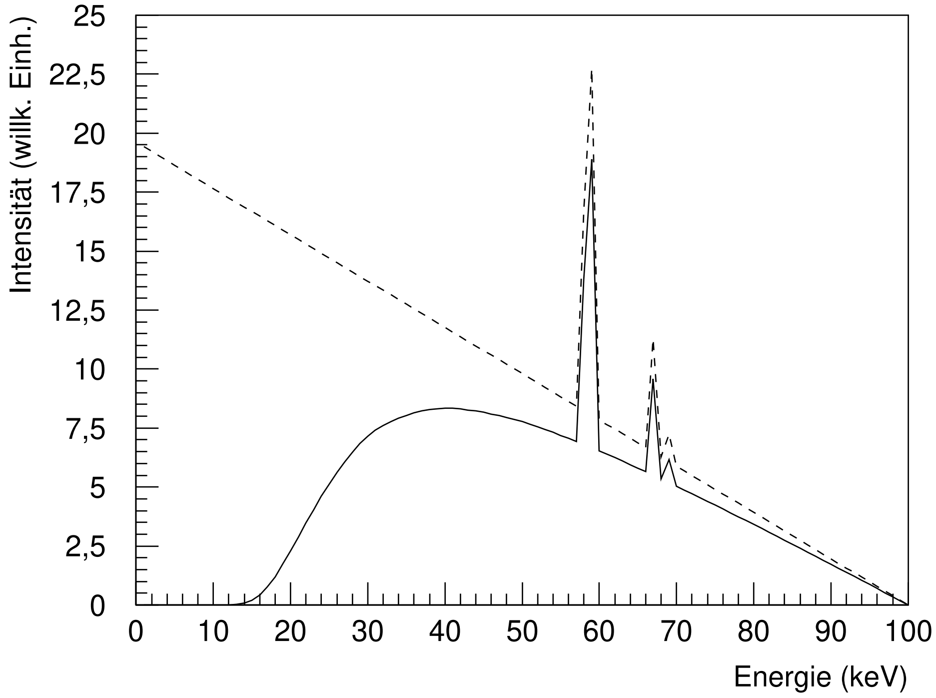

Abbildung 3.3: *Durchgezogene Linie: Verwertbares Energiespektrum der verwendeten Röntgenröhre (willk. Einheiten) hinter 1 mm Beryllium und 2 mm Aluminium-Filter nach Durchschreiten von 20 cm Luft. Gestrichelte Linie: Röhrenspektrum an der Anode vor der Filterung.*

---

[6] AIC SOFTWARE, Grafton, Massachusetts 01519, USA

3.2.2 Dosimetrie

Die Dosimetrie von nicht monoenergetischer Strahlung bildet eine Schwierigkeit, da für alle Wechselwirkungen von Strahlung mit Materie eine starke Abhängigkeit des Energieübertrags von der Teilchenenergie und der Art des Absorbers besteht. Als primäre Wechselwirkungsprozesse von Photonen mit Materie kommen im Energiebereich bis 100 keV Photo- und Comptoneffekt in Frage. In Abschnitt 3.3.1 werden die möglichen Vorgänge näher erläutert. Die durch diese Primärprozesse freigesetzten Sekundärelektronen bewegen sich frei im Material und sind aufgrund ihrer kinetischen Energie in der Lage, weitere Effekte hervorzurufen, in der Regel Ionisationen. Diese Sekundärprozesse sind oft die Hauptverursacher einer deponierten Dosis im Absorber. Gründe hierfür sind ihre große Häufigkeit – eine Primärionisation kann durchaus mehrere hundert Sekundärprozesse nach sich ziehen – sowie die wesentlich kürzere mittlere Wegstrecke von Elektronen im Vergleich zu Photonen im Material.

Eine ausführliche Bestimmung der Dosis sowie der Dosisleistung, die unter Berücksichtigung der verwendeten Röntgenröhre sowie der Bestrahlungsgeometrie erstellt wurde, findet sich in [Bus97]. Hier wurde das verwertbare Spektrum der Röntgenstrahlung (s. Abb. 3.3) mit Hilfe der Software PHOTCOEF© bestimmt, dann in hundert 1-keV-Energiebereiche eingeteilt und für jede Energie die in den bestrahlten Materialien applizierte Dosis berechnet. Dieser Wert wurde auf die mit Dosimetern gemessene Dosis korrigiert. Dieses Konzept wurde übernommen. Die Dosimetrie in den durchgeführten Experimenten wurde vergleichend mit zwei Dosimetertypen durchgeführt: kommerziellem Amber Perspex und Alaninsträngen. Die absolute Dosimetrie liegt mit beiden Verfahren bei einer Unsicherheit von 5 %, die relativen Angaben sind jedoch bei Alanin mit einem kleineren Fehler behaftet, der mit 2 % abgeschätzt wird. Eine Dosimetrie mit Alanin ist deshalb empfehlenswert. Eine Beschreibung der experimentellen Dosimetrie befindet sich in Abschnitt 5.3 (S. 35 ff.).

3.3 Schädigung von Szintillatoren durch Röntgenstrahlung

3.3.1 Wechselwirkungsprozesse von Photonen mit Materie

Energiereiche elektromagnetische Wellen sind in der Lage, Materie beim Durchgang durch diese zu ionisieren. Für die Erklärung dieser Prozesse wird das Teilchenbild der Strahlung herangezogen. Daher wird diese ionisierende elektromagnetische Strahlung unter dem Begriff „Photonenstrahlung“ zusammengefasst. Prinzipiell sind folgende Wechselwirkungsprozesse von Photonen mit Materie beobachtbar:

- **Thomson-Streuung**
  Ein im Absorber eintreffendes Photon wird von einem gebundenen Elektron vollständig absorbiert, wobei die übertragene Energie sofort an ein in beliebiger Richtung emittiertes Photon weitergegeben wird. Dieses Photon ist in der Lage, weitere Wechselwirkungen zu vollziehen. Das emittierte Photon besitzt jetzt dieselbe Energie, jedoch einen anderen Impuls (Ausbreitungsrichtung)

als das eingestrahlte. Die zur Impulserhaltung notwendige Energie, die auf die Materie übertragen wird, ist aufgrund der verhältnismäßig sehr großen Masse des Atoms oder Moleküls als Wechselwirkungspartner vernachlässigbar. Dieser Prozess ist so mit einem elastischen Stoß ohne Energieübertrag vergleichbar. Er ist für den optischen Bereich als Rayleigh-Streuung bekannt.

- **Photoeffekt**
  Ein Photon trifft auf ein in der Elektronenhülle gebundenes Elektron, wobei es vollständig absorbiert wird. Einen Teil der Energie des Photons verarbeitet das Elektron in potenzielle Energie zur Überwindung der Bindung in der Atomhülle, den Rest setzt es in kinetische Energie um. So ist es aus seiner Bindung befreit, das Restatom ist ionisiert. Dieser Effekt ist mit einem vollständig inelastischen Stoß vergleichbar.

- **Compton-Effekt**
  Ein Photon, das an einem freien oder quasifreien Elektron auf einer kernfernen Schale gestreut wird, übergibt einen Teil seiner Energie als kinetische Energie dem Elektron. Es entsteht ein niedererenergetisches Photon, das in den Raum gestreut wird und dort ebenso wie das befreite Elektron meist weitere Wechselwirkungen vollziehen kann, bis es seine gesamte Energie abgegeben hat.

- **Paarbildung**
  Besitzt ein Photon mindestens die doppelte Energie, die die Ruhemasse eines Teilchens ausmacht, kann es im Coulombfeld eines Kerns zur Paarbildung kommen, d. h. aus der Energie des Photons bildet sich ein Teilchen – Antiteilchen-Paar. Überschüssige Energie wird von den neuen Teilchen in kinetische Energie umgesetzt. Da das Elektron die leichteste Ruhemasse von $511\,\mathrm{keV/c^2}$ besitzt, ist also eine Photonenenergie von mindestens 1,022 MeV nötig, damit sich ein Elektron-Positron-Paar bilden kann.

- **Kernphotoeffekt**
  Bei sehr hohen Photonenenergien im Bereich der Kernbindungsenergien ($E \sim 10\,\mathrm{MeV}$) kann ein Photon mit einem oder mehreren Nukleonen wechselwirken. Analog zum oben beschriebenen Photoeffekt werden hier bei vollständiger Absorption des Photons ein oder mehrere Nukleonen aus dem Kern emittiert.

In Abb. 3.4 sind die Dominanzbereiche der wichtigsten Wechselwirkungen in Abhängigkeit von Photonenenergie und Ordnungszahl des Absorbers dargestellt.

Bei Atomen niedriger Ordnungszahl wie den untersuchten Kohlenwasserstoffen dominiert über große Bereiche der Compton-Effekt praktisch unabhängig von der Photonenenergie. Bei schwereren Kernen ist bei niedrigen Photonenenergien ($10^{-2}\,\mathrm{MeV} \ldots 0{,}5\,\mathrm{MeV}$) der Photoeffekt dominant, während es bei hohen Energien ($> 8\,\mathrm{MeV}$) bevorzugt zur Paarbildung kommt.

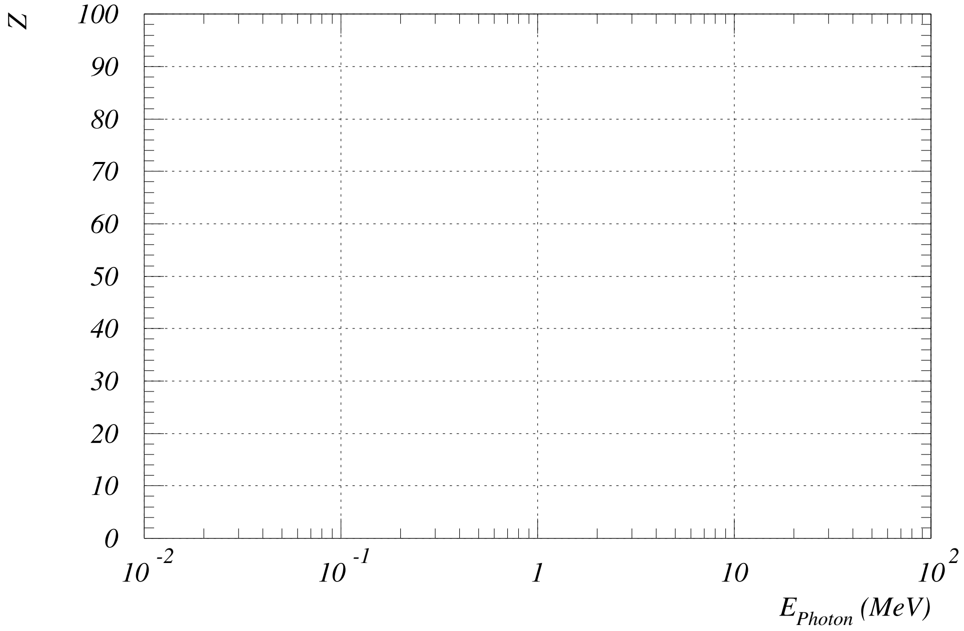

Abbildung 3.4: *Dominanzbereiche der verschiedenen Wechselwirkungseffekte von Photonenstrahlung mit Materie als Funktion der Ordnungszahl des Absorbermaterials und der Photonenenergie.*

3.3.2 Prozesse in Polymeren durch Röntgenstrahlung

Die Wechselwirkungen von Röntgen-Photonen mit organischen Materialien im interessierenden Energiebereich sind Compton- und Photoeffekt der Primärstrahlung (s. Abb. 3.4) sowie Ionisationen durch Sekundärelektronen, die aufgrund ihrer im Verhältnis zu γ-Quanten kürzeren mittleren Weglänge die größere Dosis im Polymer deponieren. Für größere Photonenenergien bis hin zu einigen MeV sind für organische Szintillatoren durch ihre kleine mittlere Ordnungszahl ebenfalls hauptsächlich Comptonprozesse zu erwarten. Eine Vergleichbarkeit mit der Schädigung durch Teilchenstrahlung ist durch den hohen Anteil der Sekundärelektronenschädigung ebenfalls vorhanden.

Polymere zeigen unter dem Einfluss von ionisierender Strahlung dabei ein Schädigungsverhalten, das in drei Stufen von chemischen Reaktionen eingeteilt werden kann [Clo88]:

(I) Initiation: Durch die Strahlung werden im Polymer Radikale R• gebildet. Dies können Kettenbrüche sein, die vorwiegend im Grundstoff PMMA auftreten, oder, wie bei Polystyrol bevorzugt, End- bzw. Seitengliederabspaltung (H-Abspaltung):

$$\mathrm{R} \xrightarrow{\gamma} \mathrm{R}\bullet \tag{3.4}$$

Die Lebensdauer der Radikale kann unterschiedlich sein. Sie hängt z. B. von ihrer Größe und Beweglichkeit ab: Während einzelne Atome bis hin zu kleinen Molekülgruppen durch das Material diffundieren und weiterreagieren können, sind Makroradikale allein zu Rotationen oder Schwingungen imstande.

(II) Propagation/Migration: Es kommt zu Folgereaktionen. Die entstandenen Radikale suchen nach Reaktionspartnern. Die Stelle des Strahlenschadens kann abhängig von äußeren Bedingungen, z. B. Temperatur, Atmosphäre etc. wandern. Der Prozess der Radikalstellenwanderung für Makroradikale ist dabei strittig. Eher unwahrscheinlich ist die Theorie, dass es nur z. B. durch Rotation eines Makromoleküls zur Fortbewegung der radikalischen Stelle kommen kann, eher wird die radikalische Stelle weitergegeben [BK64]. Besonders hervorzuheben ist hier die schnelle und heftige Reaktion mit freien O_2-Molekülen, wenn Sauerstoff im Polymer gelöst ist. Die entstehenden Peroxid-Radikale $RO_2\cdot$ können weiterreagieren, z. B. zu Hydroperoxiden:

$$
\begin{aligned}
R\cdot + O_2 &\longrightarrow RO_2\cdot && (3.5)\\
RO_2\cdot + RH &\longrightarrow RO_2H + R\cdot && (3.6)
\end{aligned}
$$

und es kann zu weiteren Tochterprozessen kommen, die eine radikalische Stelle im Polymer wandern lassen:

$$
\begin{aligned}
RO_2H &\longrightarrow RO\cdot\ + \cdot OH && (3.7)\\
RO\cdot + RH &\longrightarrow ROH + R\cdot && (3.8)\\
\cdot OH + RH &\longrightarrow H_2O + R\cdot && (3.9)
\end{aligned}
$$

(III) Termination: In der letzten Stufe finden dann radikalische Partner wieder zu einer Ausheilung oder einem Permanentschaden zusammen. Zwei radikalische Stellen neutralisieren sich, die Reaktionskette bricht ab:

$$
\begin{aligned}
R\cdot + R\cdot &\longrightarrow RR && (3.10)\\
RO_2\cdot + R\cdot &\longrightarrow RO_2R && (3.11)\\
RO_2\cdot + RO_2\cdot &\longrightarrow RO_2R + O_2 && (3.12)
\end{aligned}
$$

Diese allgemeinen Schemata können ohne genaue Angabe der chemischen Reaktionen auf alle bestrahlten Polymere angewendet werden, um die Vorgänge zu erklären. Dabei wird den entstehenden Radikalen die Fähigkeit zugesprochen, sichtbares Licht zu absorbieren. Gerade in den Ausbreitungsreaktionen, aber auch bei der Terminierung der Prozesse spielt der in der Probe vorhandene Sauerstoff eine große Rolle. Zum einen fördert er eine Propagation, zum anderen eröffnet er weitere Reaktionskanäle der Ausheilung, die es in sauerstofffreier Atmosphäre nicht gibt. Ob vorhandener Sauerstoff sich positiv oder negativ auf den optischen Strahlenschaden auswirkt, ist von vielen äußeren Bedingungen abhängig wie Temperatur, Atmosphäre und Vorlagerung der Probe, Probengeometrie, Dosisleistung der Bestrahlung und mehr.

Neben der Trägermatrix der Faser können auch die in den Szintillatorfasern enthaltenen Farbstoffe geschädigt werden. Sie können dabei ähnliche Reaktionsschemata wie das Polymer selbst aufweisen. Eine Schädigung macht sich bemerkbar durch eine geringere Primärlichtausbeute sowie evtl. ein verändertes Emissionsspektrum.

Als weiterer Effekt der Farbstoffzerstörung kann sich eine Verbesserung der Fasertransmission im optischen Absorptionsbereich des zerstörten Farbstoffs ergeben, die sich mit der Transmissionsentwicklung des Trägermaterials überlagert.

Die Szintillationslichtintensität der Faser kann im vorliegenden Experiment während der Bestrahlung gemessen werden. Ihre Abschwächung ergibt sich aus einer Überlagerung von zwei Effekten: zum einen dem Transmissionsschaden durch die Entstehung von Absorptionszentren, da das Fluoreszenzlicht zumindest teilweise durch die geschädigte Faser zum Photomultiplier geleitet wird, und zum anderen dem Emissionsschaden durch Zerstörung der Farbstoffe. Eine spektral aufgelöste Emission und damit eine Beobachtung der Beeinflussung des Emissionsspektrums der Faser durch ionisierende Strahlung ist mit dem aktuellen Aufbau nicht messbar.

3.3.3 Schädigung von Polystyrol

In Polystyrol ist bei Bestrahlung mit Dosen bis zu etwa 100 kGy die Produktion von primären Benzylradikalen dominant, in welcher das tertiäre H-Atom gegenüber dem Benzolring abgespalten wird [Har69](s. Abb. 3.5).

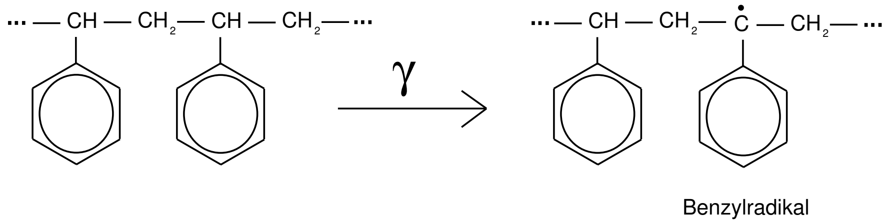

Abbildung 3.5: *Schädigung von Polystyrol nach [Har69]: Bei kleinen Dosen entsteht primär ein Benzylradikal durch Abspaltung eines Wasserstoffatoms.*

Für höhere Dosen entstehen vorwiegend Cyclohexadienyl-Radikale, die durch Anlagerung eines H-Atoms an den Benzolring entstehen. Für Dosen ab 1,7 MGy soll weiterhin ein dritter Typ von Radikalen entstehen.

Im weiteren Verlauf der chemischen Reaktionen kommt es in PS als lineare Kette vorwiegend zu Kettenvernetzungen (Crosslinking). Dies führt auch zu einer mechanischen Veränderung, z. B. zur Vergrößerung der Elastizität.

PS ist durch seine Phenylgruppe (Benzolring) sehr strahlenresistent. Diese ist in der Lage, Energie aufzunehmen, die dann nicht mehr für eine Produktion von radikalischen Stellen zur Verfügung steht. Dieser Vorgang ist so effektiv, dass der G-Faktor für Crosslinking G(X), ein Maß für diese Art der Schädigung des Materials, mit $G(X)_{\mathrm{PS}} = 0{,}035$–$0{,}050$ um zwei Größenordnungen kleiner ist als der von Polyethylen ($G(X)_{\mathrm{PE}} = 1{,}0$–$2{,}5$), welches diese Phenylgruppe nicht besitzt [Clo88].

3.3.4 Schädigung von PMMA

PMMA ist deutlich strahlenempfindlicher als PS. Eine primäre Schädigung findet in der Abspaltung der funktionellen Gruppe $COOCH_3$ statt (Nebenkettenbruch)[DFG70]. Diese kann im weiteren Verlauf in gasförmige Produkte zerfallen, die aus dem Material herausdiffundieren (leichtere Moleküle) oder in gelöstem Zustand im Polymer gehalten werden. Diese Nebenkettenabspaltung bereitet einen Hauptkettenbruch vor (s. Abb. 3.6).

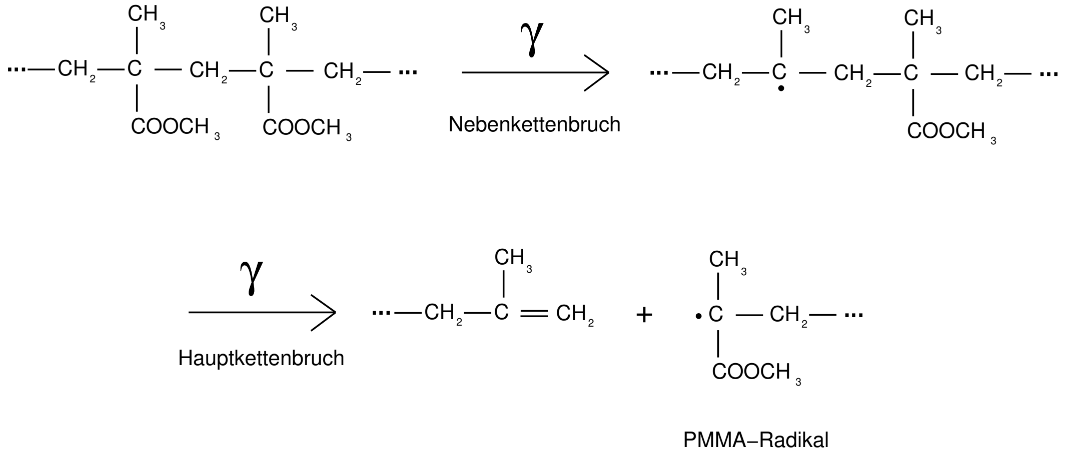

Abbildung 3.6: *Schädigung von PMMA nach [DFG70]: Die Abspaltung der Nebengruppe bereitet den Hauptkettenbruch vor, durch den das PMMA-Radikal produziert wird.*

Die sich im Laufe der Schädigung erhöhende Dichte von Hauptkettenbruchstellen kann zu C=C-Doppelbindungen führen (Disproportionierung durch Austausch eines H-Atoms zwischen zwei benachbarten Radikalstellen). Durch diesen Prozess sinkt die anfangs hohe Gasproduktion. Als verzweigte Kette mit quartären C-Atomen neigt PMMA dabei eher zu Kettenbrüchen, die bei hohen Dosen eine deutliche Verkleinerung der mittleren Moleküllänge und so eine Aufweichung des Materials zur Folge hat.

3.4 Definition des optischen Strahlenschadens

Durch die Bestrahlung mit Röntgenlicht verändert sich die Polymerstruktur des Fasermaterials. Nach der Bestrahlung sind ebenfalls Prozesse zu beobachten. In optischen Untersuchungen machen sich diese durch eine Veränderung des wellenlängenabhängigen Transmissionsvermögens bemerkbar. Man beschreibt die Intensität des durch eine Faser transmittierten Lichtes mit Hilfe des Lambertschen Absorptionsgesetzes:

$$I(\lambda, l) = I_0 \cdot e^{-\mu(\lambda,t)\cdot l} \quad . \tag{3.13}$$

I bezeichnet dabei die Intensität innerhalb der Faser nach dem zurückgelegten Weg l (Länge der Faser), I_0 die Ursprungs-Intensität und μ den wellenlängenabhängigen

Absorptionskoeffizienten, welcher sich durch Bestrahlung mit der Zeit t ändern kann. Bei dieser Betrachtung werden Ein- und Auskoppelverluste an den Enden der Faser nicht berücksichtigt. Diese vermindern die reale Transmission, sie sind abhängig vom Brechungsindex der aneinander koppelnden Materialien. Diese Eigenschaft wird sich jedoch während der Untersuchung nicht ändern, weshalb diese Verluste nicht in die Berechnung einbezogen werden.

Ein optischer Strahlenschaden macht sich durch eine Veränderung des Absorptionskoeffizienten μ bemerkbar; diese strahleninduzierte Veränderung $\Delta\mu$ wird als Maß für den Strahlenschaden herangezogen:

$$\Delta\mu(\lambda,t) = \mu_{\mathrm{irr}}(\lambda,t) - \mu_{\mathrm{ini}}(\lambda) = -\frac{1}{l} \cdot \ln\left(\frac{I_{\mathrm{irr}}(\lambda,t)}{I_{\mathrm{ini}}(\lambda)}\right) \tag{3.14}$$

mit $I_{\mathrm{ini}}(\lambda)$ als gemessene Lichtintensität der unbestrahlten Faser und $I_{\mathrm{irr}}(\lambda)$ als Intensität der geschädigten. Dabei wird als Referenzwert im genutzten Experiment nicht die Lichtintensität durch die Faser vor der Bestrahlung verwendet, sondern zeitgleich zur Schädigung wechselweise die Transmission durch eine zweite unbestrahlte Faser gemessen. Auch an dieser bleiben Ein- und Auskoppelverluste konstant und brauchen in der Bestimmung des Strahlenschadens nicht berücksichtigt zu werden. Die zeitliche Stabilität des Untersuchungsaufbaus erhöht sich durch diese Praxis; zudem wird ein eventuell auftretender Einfluss des Messlichtes auf die Faser, der so auf beide Fasern ausgeübt wird, minimiert.

Die angegebene strahleninduzierte Absorption $\Delta\mu$ ist unabhängig von der Faserlänge und lässt auf einfache Weise Vergleiche zwischen gemessenen optischen Absorptionen aus verschiedenen Untersuchungen zu.

Kapitel 4

Zugrunde liegende Kinetiken

Durch die Bestrahlung mit Röntgenlicht entstehen im Polymer Absorptionszentren, die oder deren Folgeprodukte Licht absorbieren können. Obwohl die Natur dieser Absorptionszentren verschieden sein kann, werden als Primärprodukte häufig Radikale entstehen. Deshalb werden in diesem Kapitel anlehnend an Abschnitt 3.3.2 die Bestrahlungsprodukte verallgemeinernd als Radikale R• bezeichnet.

4.1 Radikalentwicklung während der Bestrahlung

Die Produktionsrate einer beliebigen Radikalsorte $R_i\bullet$ hängt neben der Dichte des Materials ϱ und der Radikalproduktionsausbeute pro deponierter Energie g_i von der Dosisleistung der Bestrahlung $\dot{D}$ ab:

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D} \quad . \tag{4.1}$$

Der Faktor g_i ist dabei proportional zum sog. g-Wert, der die Zahl der Radikale pro 100 eV absorbierter Energie angibt. Eine Integration von Gl. 4.1 gibt bei nicht zerfallenden Radikalen eine lineare Abhängigkeit der Radikalkonzentration von der applizierten Dosis:

$$[R_i\bullet](t) = g_i \cdot \varrho \cdot D(t) \quad . \tag{4.2}$$

Im Allgemeinen werden die entstehenden Radikale jedoch zerfallen, wobei die Geschwindigkeit des Zerfalls von der Konzentration der vorhandenen Radikale abhängt. Entstehung und Zerfall von Radikalen überlagern sich während der Bestrahlung, so dass sich eine Sättigung der Radikalkonzentration ergibt.

Prinzipiell sind verschiedene Möglichkeiten des Radikalabbaus denkbar: Bei einem einfachen Zerfall ($R_i\bullet \rightarrow$ X), einem statistischen Prozess erster Ordnung, hängt die Zerfallsrate linear mit der Radikalkonzentration zusammen. Dies könnte z. B. bei einer Folgereaktion mit Sauerstoff der Fall sein. Für den Bestrahlungszeitraum ergibt sich die Entwicklung der Radikalkonzentration:

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D} - k_i \cdot [R_i\bullet](t) \quad , \tag{4.3}$$

mit der Reaktionskonstanten k_i für den Zerfall.

Bei einer direkten Rekombination von zwei Radikalen ($R_i\bullet + R_i\bullet \rightarrow \mathrm{X}$), die einen Prozess zweiter Ordnung darstellt, ist die Zerfallsrate vom Quadrat der Konzentration der beteiligten Radikale abhängig, und es ergibt sich die folgende Gesamtradikalentwicklung:

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D} - k_i' \cdot [R_i\bullet]^2(t) \quad , \tag{4.4}$$

hier mit der Reaktionskonstanten k_i', die den Zerfall beschreibt.

In beiden Fällen wird bei konstanter Radikalproduktion der konzentrationsabhängige Zerfall im Laufe der Bestrahlungsphase stärker, so dass sich ein Gleichgewicht zwischen Produktion und Reduktion einstellen wird, wenn die Bestrahlung ausreichend lange stattfindet. Die Sättigungskonzentration $[R_{i\mathrm{S}}\bullet]$ ergibt sich im Fall der Rückreaktion erster Ordnung (Gl. 4.3):

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = 0 \quad \Leftrightarrow \quad g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D} = k_i \cdot [R_{i\mathrm{S}}\bullet] \quad , \tag{4.5}$$

was zu folgendem Sättigungsniveau führt:

$$[R_{i\mathrm{S}}\bullet] = \frac{g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D}}{k_i} \quad ; \tag{4.6}$$

bei einer Rückreaktion zweiter Ordnung ergibt sich nach Gl. 4.4 eine Sättigungskonzentration $[R_{i\mathrm{S}}\bullet]$, die proportional zur Wurzel aus der Dosisleistung ist:

$$g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D} = k_i' \cdot [R_{i\mathrm{S}}\bullet]^2 \quad , \tag{4.7}$$

bzw.

$$[R_{i\mathrm{S}}\bullet] = \sqrt{\frac{g_i \cdot \varrho \cdot \dot{D}}{k_i'}} \quad \propto \quad \sqrt{\dot{D}} \quad . \tag{4.8}$$

Die optische Absorption, die von den entstehenden Radikalen ausgeht, kann man mit den gleichen Abhängigkeiten beschreiben. Das spektrale Absorptionsvermögen der verschiedenen Radikale kann dabei mit einem optischen Wirkungsquerschnitt $\sigma_i(\lambda)$ bewertet werden, der einen wellenlängenabhängigen Zusammenhang zwischen optischem Strahlenschaden und Radikalkonzentration $[R_i\bullet]$ beschreibt:

$$\Delta\mu(\lambda, D, t) = \sigma_i(\lambda) \cdot [R_i\bullet](D, t) \quad . \tag{4.9}$$

Eine Lösung der Differentialgleichung 4.4 ist nach [Wul95]:

$$\begin{aligned}
\Delta\mu(\lambda, D) &= \Delta\mu_{\mathrm{S}}(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{g_i \cdot \varrho \cdot k_i'}{\dot{D}}} \cdot D\right) \qquad \Big|\ \kappa_i = g_i \cdot k_i' \cdot \varrho \\
&= \Delta\mu_{\mathrm{S}}(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\frac{\kappa_i}{\dot{D}}} \cdot D\right) \qquad (4.10) \\
\text{bzw.} \qquad \Delta\mu(\lambda, t) &= \Delta\mu_{\mathrm{S}}(\lambda, \dot{D}) \cdot \tanh\left(\sqrt{\kappa_i \cdot \dot{D}} \cdot t\right)
\end{aligned}$$

mit dem Sättigungsniveau

$$\begin{aligned}
\Delta\mu_{\mathrm{S}}(\lambda, \dot{D}) &= \frac{\sigma_i(\lambda)}{k_i'}\sqrt{\kappa_i \cdot \dot{D}} \qquad \Big|\ k_i' = \frac{\kappa_i}{g_i \cdot \varrho} \\
&= \sigma_i(\lambda) \cdot g_i \cdot \varrho \cdot \sqrt{\frac{\dot{D}}{\kappa_i}} \quad . \qquad (4.11)
\end{aligned}$$

In optischen Messungen können die beiden Größen Produktionsrate g_i und optischer Absorptions-Wirkungsquerschnitt $\sigma_i(\lambda)$ nicht getrennt werden. Unter Zusammenfassung des Produktes ergibt sich zusammen mit der Dichte des Stoffes eine vereinfachte Darstellung der Sättigungskonzentration aus Gl. 4.11:

$$\begin{aligned}
\Delta\mu_{\mathrm{S}}(\lambda, \dot{D}) &= \Sigma(\lambda) \cdot \sqrt{\frac{\dot{D}}{\kappa}} \qquad (4.12) \\
\Sigma(\lambda) &= \sigma(\lambda) \cdot g \cdot \varrho \\
[\Sigma(\lambda)] &= \frac{1}{\mathrm{m} \cdot \mathrm{Gy}} \\
[\kappa] &= \frac{1}{\mathrm{Gy} \cdot \mathrm{h}}
\end{aligned}$$

Die zwei Parameter $\Sigma(\lambda)$ und κ beschreiben dabei den Anstieg des Strahlenschadens während der Bestrahlung.

4.2 Radikalentwicklung nach der Bestrahlung

Im zeitlichen Bereich nach Ende der Bestrahlung ($t > t_e$) fällt die Radikalproduktion weg, die Reaktionskanäle für die Reduktion bleiben offen. Die Radikalentwicklung lässt sich mit den gleichen Differentialgleichungen beschreiben, die während der Bestrahlung gültig sind. Für eine Radikalreaktion 1. Ordnung wird so aus Gl. 4.3:

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = -k_i \cdot [R_i\bullet](t) \quad , \qquad (4.13)$$

was zu einer einfachen Exponentialfunktion als Lösung führt:

$$[R_i\bullet](t) = [R_{i\mathrm{S}}\bullet] \cdot \mathrm{e}^{-k_i\cdot(t-t_e)} \quad , \tag{4.14}$$

wenn die Sättigungskonzentration $[R_{i\mathrm{S}}\bullet]$ während der Bestrahlung erreicht wurde.

Der optisch beobachtbare Rückgang des strahleninduzierten Absorptionskoeffizienten $\Delta\mu$ lässt sich nach der Lösung der Differentialgleichung erhalten, wenn Gl. 4.14 mit dem Wirkungsquerschnitt für die optische Absorption $\sigma_i(\lambda)$ multipliziert wird:

$$\Delta\mu(t) = \Delta\mu_\mathrm{S} \cdot \mathrm{e}^{-k_i\cdot(t-t_e)} \quad . \tag{4.15}$$

Für den Reaktions-Fall der 2. Ordnung wird aus Gl. 4.4:

$$\frac{d}{dt}[R_i\bullet](t) = -k_i' \cdot [R_i\bullet]^2(t) \quad . \tag{4.16}$$

Die Entwicklung der optischen Absorption ergibt sich zu:

$$\Delta\mu(t) \;=\; \frac{\Delta\mu(t_e)}{1 + \underbrace{\Delta\mu(t_e) \cdot \frac{k_i'}{\sigma_i(\lambda)}}_{\tau^{-1}} \cdot (t - t_e)} \tag{4.17}$$

bzw.

$$\Delta\mu(t) = \frac{\Delta\mu(t_e)}{1 + \frac{t-t_e}{\tau}} \tag{4.18}$$

mit dem von der Wellenlänge unabhängigen Ausheilparameter:

$$\tau = \Delta\mu(t_e,\lambda)^{-1} \cdot \frac{\sigma_i(\lambda)}{k_i'} = \Delta\mu(t_e,\lambda)^{-1} \cdot \frac{\Sigma_i(\lambda)}{\kappa_i} \quad , \tag{4.19}$$

der die erste Halbwertszeit angibt. Nach der Zeit $t = 3\,\tau$ ist die Absorption auf ein Viertel gefallen.

Beobachtet man die Radikalentwicklung in der Probe über deren optische Absorption, kann mit Hilfe der sich unterschiedlich entwickelnden spektralen Absorptionsbereichen das Entstehungs- und Zerfallsverhalten verschiedener Radikale getrennt werden. Stabile optische Absorptionszentren, die nach Gl. 4.2 proportional zur applizierten Dosis entstehen, ändern nach der Bestrahlung ihre Konzentration nicht. Ein optischer Permanentschaden im absorbierenden Bereich ist die Folge. Zusammen mit dem nach einem Prozess zweiter Ordnung ausheilenden Anteil ergibt sich die Schadensentwicklung zu

$$\Delta\mu(t) = \frac{\Delta\mu(t_e)}{1 + \frac{t-t_e}{\tau}} + \Delta\mu_{perm} \quad . \tag{4.20}$$

Kapitel 5

Experimentalaufbau

Der experimentelle Aufbau der vorliegenden Untersuchungen ist umfangreich beschrieben worden in [Wul95] (Optischer Aufbau), [Bus97] und [Zou97]. Der schematische Aufbau ist in Abb. 5.1 dargestellt.

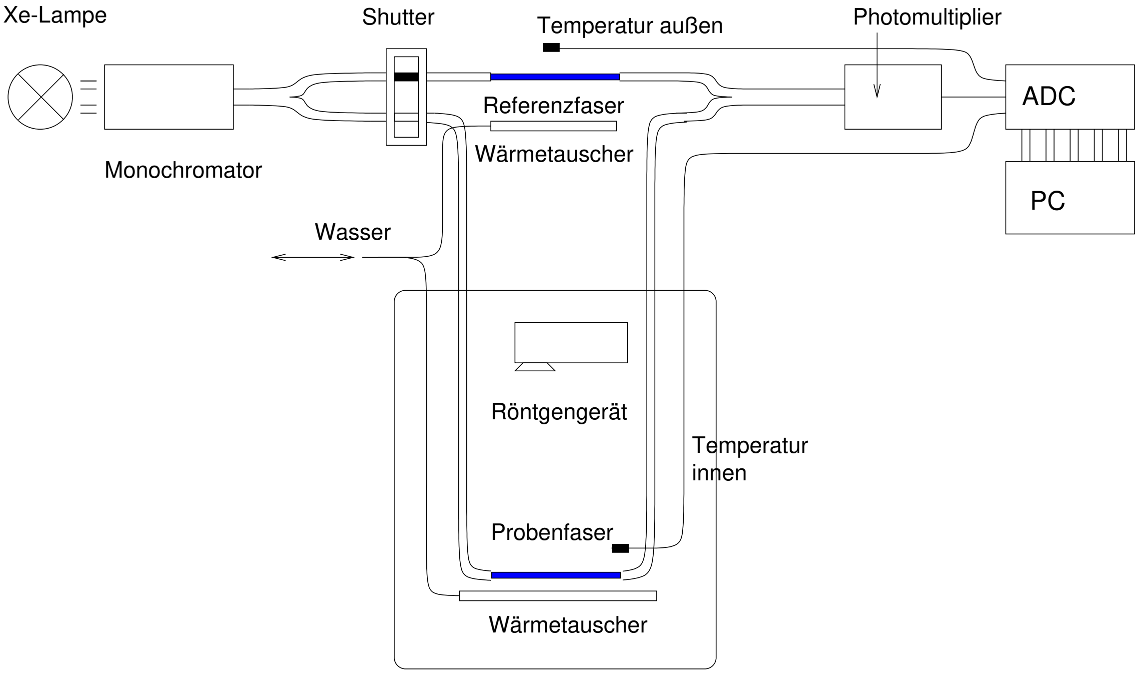

Abbildung 5.1: *Schematischer Aufbau der Messapparatur zur Bestrahlung der Probe und zur Bestimmung des optischen Strahlenschadens nach Gleichung 5.1.*

In einem Röntgenschrank werden gerade oder aufgerollte Fasern mit einer 100-kV-Röntgenröhre vom Typ MCN 101 der Firma Philips[1] bestrahlt. Über Lichtleiter des Typs UV-QQ des Herstellers Schott[2] wird das monochromatisierte Licht einer 35-W-Xenonlampe der Firma Hamamatsu[3] abwechselnd durch die Probenfaser und eine gleichlange Referenzfaser desselben Typs geleitet. Die Gesamtlänge der Schott-

---

[1] Philips Industrial X-Ray GmbH, Röntgenstr. 24–26, D-22335 Hamburg

[2] Schott Glaswerke Faseroptik, Hagenauer Str. 38, D-65203 Wiesbaden

[3] HAMAMATSU Photonics Deutschland GmbH, Arzbergstr. 10, D-82211 Hersching

Faserarme beträgt dabei 6 Meter (Probenarm) bzw. 2 Meter (Referenzarm). Die Beleuchtungsstärke der Fasern wird angeglichen. Am Ende wird die transmittierte Lichtintensität von einem Photomultiplier R928 von Hamamatsu ausgelesen, der an einen ADC in einem Linux-PC angeschlossen ist. Die rechnerische Ermittlung der strahleninduzierten Absorption wird über die Software PAW (Physics Analysis Workstation)[PAW95] durchgeführt. Alle Untersuchungen fanden bei Raumtemperatur und bis auf eine Ausnahme in normaler Luft statt[4].

Anstatt des in Gleichung 3.14 angeführten Vergleichs zwischen der Ausgangstransmission und der sich entwickelnden Transmission in der Probenfaser wird mit diesem Experiment die Transmission der Probe mit der praktisch gleichzeitig aufgenommenen Transmission einer gleichartigen Referenzfaser verglichen. Somit werden Schwankungen, die nicht durch die Bestrahlung hervorgerufen werden, minimiert, da sie i. Allg. auf beide Fasern gleich oder in ähnlichem Umfang wirken. Beispielsweise kann das Messlicht der Xenonlampe Einfluss auf das Transmissionsvermögen der Faser haben, weshalb beide Fasern im Experiment mit ähnlichen Intensitäten beleuchtet werden. Für eine Temperaturstabilisierung sorgen an beiden Fasern angebrachte Wärmetauscher, welche die Temperaturdifferenz von Probe und Referenz trotz der Abwärme der Röntgenröhre minimieren. Zur Überwachung wurden Temperatursensoren in unmittelbarer Nähe der Fasern eingesetzt. Die Temperaturdifferenz der Fasern durch die Bestrahlung beträgt maximal 1,5 K.

Die Gleichung 3.14 zur Bestimmung des Strahlenschadens verändert sich mit dem Einsatz der Referenzfaser zu:

$$\Delta\mu(\lambda) = -\frac{1}{l} \cdot \ln\left(\frac{I_{\mathrm{irr}}(\lambda)}{I_{\mathrm{ini}}(\lambda)} \cdot \frac{I_{\mathrm{ini}}^{\mathrm{ref}}(\lambda)}{I_{\mathrm{irr}}^{\mathrm{ref}}(\lambda)}\right) \quad . \tag{5.1}$$

Trotz der so stark verbesserten Langzeitstabilität des Messaufbaus kann ein Einlaufzeitraum des Experiments von ca. 20–40 Stunden nicht sinnvoll unterschritten werden, anschließend ergibt sich eine hohe Stabilität. Die Schwankungen im Lichtintensitätsverhältnis liegen bei unter 1 % in 100 Stunden.

Im Folgenden sollen ergänzend zu [Wul95], [Bus97] und [Zou97] kurz einige spezielle Eigenschaften des optischen Experiments und der Bestrahlungseinrichtung vorgestellt werden.

5.1 Optischer Messaufbau

Das optische Experiment zeichnet sich durch eine hohe Stabilität in den durchgeführten Langzeituntersuchungen aus. Der nutzbare Spektralbereich des Experiments liegt zwischen 330 und 740 nm. Trotz der UV-Durchlässigkeit der verwendeten Schott-Lichtleiter macht die Länge der Zu- und Abführung des Lichtes eine Nutzung von kleineren Wellenlängen unmöglich. Die durchgeführten Untersuchungen wurden abhängig von den Transmissions- bzw. Absorptionsbereichen der verwendeten Fasern auf ein jeweiliges Spektrum von 300 nm beschränkt, das in Monochromatorschritten

---

[4] Eine später erläuterte Bestrahlung wurde in Inertgas durchgeführt.

von 5 nm aufgenommen wurde. So ergibt sich für jede Wellenlänge eine zeitliche Auflösung von ca. 6 Minuten. Eine höhere Wiederholrate ist bei Einengung des aufgenommenen Spektrums ohne weiteres möglich. Das ist jedoch dann nicht sinnvoll, wenn die Absorptionsspektren verschiedener Radikale identifiziert werden sollen. Dies kann in der Regel nur dann gelingen, wenn man spektrale Bereiche beobachtet, in denen sich nur die Absorption eines Radikals entwickelt. Durch die Beschreibung der zeitlichen Absorptionsentwicklung in diesem Bereich ist es möglich, die Entstehung einer Radikalsorte zu separieren. Mit einer Einengung des beobachteten Spektrums wird eine Trennung der Absorptionszentren zunehmend schwieriger.

Die eingesetzten Fasern wurden an den Enden poliert und über Messinghülsen an die Lichtleiter gekoppelt. Je nach Länge wurden sie als gerades Stück oder als Ring von etwa 11 cm Durchmesser aufgerollt in den Bestrahlungsraum gelegt.

Um eine gesicherte Information über die Transmissionsentwicklung der Faser zu erzielen, wurden nur Daten verwendet, die Lichtintensitäten nicht unter 5 % der maximal auslesbaren Intensität auswiesen. Dies führte durch Effekte der Selbstabsorption insbesondere für Szintillatoren zu Einschränkungen bei kurzen Wellenlängen.

Bei der Bestrahlung von blauen Szintillatoren können nur kurze Faserstücke verwendet werden. Bei längeren Fasern würde die Szintillationslichtintensität im Verhältnis zur Intensität des transmittierten Lichtes zu groß. Bei klaren Lichtleitern stellt sich dieses Problem nicht. Allerdings ist bei sehr großen Transmissionsänderungen eine Abhängigkeit der gemessenen strahleninduzierten Absorption von der Länge der Faser nicht auszuschließen, insbesondere wenn in der Faser keine Absorption des

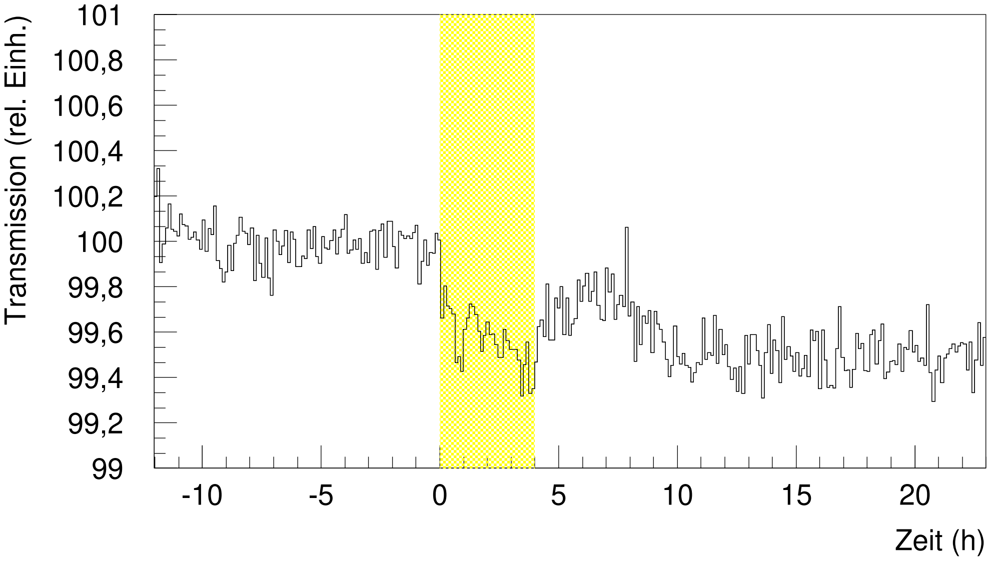

Abbildung 5.2: *Transmissionsentwicklung in einem 10 cm langen Lichtleiterbündel des Typs UV-QQ des Herstellers Schott, das 4 Stunden lang einer 100-keV-Röntgenstrahlung ausgesetzt wurde. Der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben. Die Entwicklung wird beispielhaft für $\lambda = 580\,nm$ gezeigt.*

Lichtes auftritt, sondern das Licht gestreut wird. Deshalb wurde beispielhaft die Transmissionsentwicklung bei Bestrahlung einer 10 cm langen BCF-98-Lichtleitfaser mit der eines 90 cm langen Stücks verglichen. Es ergab sich unter den genutzten Experimentierbedingungen keine Abhängigkeit des optischen Strahlenschadens von der Länge der Probe.

Die an die Faser angeschlossenen UV-Lichtleiter sind gegen die Röntgenstrahlung mit Blei und Kupfer abgeschirmt; zusätzlich wurde die Strahlenresistenz der Lichtleitfasern überprüft. Die Bestrahlung eines 10 cm langen Lichtleiterbündels ist in Abb. 5.2 dargestellt: Es konnte auch bei der unabgeschirmt bestrahlten Faser über den beobachteten Spektralbereich von 350–650 nm keine signifikante Transmissionsveränderung festgestellt werden, so dass der Einfluss einer Schädigung der Lichtleitfaserbündel auf das Experiment ausgeschlossen werden kann. Die Änderung der Transmission während der Bestrahlung beschränkte sich auf etwa 4 ‰, wie am Beispiel der dargestellten Wellenlänge von 580 nm zu erkennen.

5.2 Bestrahlungseinrichtung

Die Schädigung der Fasern erfolgte durch eine Philips Röntgenröhre MCN 101, die in einen Bleischrank eingebaut ist. Sie ist mit einer festen Wolframanode ausgestattet und wird mit bis zu 100 kV Beschleunigungsspannung und wahlweise mit 6 oder 15 mA Anodenstrom betrieben[5]. Die relative Dosisverteilung der Röntgenröhre wurde mit Hilfe von Thermolumineszenzdosimetern überprüft, sie ist in Abb. 5.3 für eine Entfernung von 32 cm vom Anodenfokus dargestellt [Bus97]. In den Ecken der Fläche sind deutliche Abschattungen durch die Filterung bzw. die runde Röhrenaustrittsöffnung zu erkennen, ein Ring von etwa 10 cm Durchmesser wird in der Entfernung von ca. 30 cm relativ homogen bestrahlt.

Fast alle durchgeführten Experimente hielten einen Faserabstand von 29,5 cm zum Anodenfokus der Röntgenröhre ein. Die verabreichte Dosisleistung der aufgerollten Faser liegt nach Abb. 5.3 um etwa 5 % unter der einer diagonal platzierten geraden Faser.

Wird eine Szintillatorfaser bestrahlt, entsteht in ihr Fluoreszenzlicht. Die optischen Messungen lassen neben den Transmissionsmessungen eine Aufnahme der Fluoreszenzlichtintensität der Faser zu. Dies geschieht, indem der Photomultiplier ausgelesen wird, während der Shutter Proben- und Referenzkanal geschlossen hält. Auf die Photokathode trifft jetzt nur noch Licht, welches hinter dem Shutter in das System eingekoppelt wird. Dieses „Nullsignal“, welches zur Berechnung des Strahlenschadens von Proben- bzw. Referenzsignal subtrahiert wird, besteht aus Streulicht und – während der Bestrahlung – dem Szintillationslicht.

Die Entwicklung der Szintillationslichtausbeute der Faser während einer Bestrahlung setzt sich zusammen aus der Entwicklung der Primärlichtausbeute am Ort der Entstehung und dem Transmissionsschaden der Faser durch die Bestrahlung. Eine verlässliche Untersuchung der Einflüsse der Röntgenstrahlung auf die Trans-

---

[5] Fast alle Bestrahlungen erfolgten mit 100 kV Beschleunigungsspannung und 15 mA Anodenstrom, Abweichungen sind in Anhang B.1 aufgeführt.

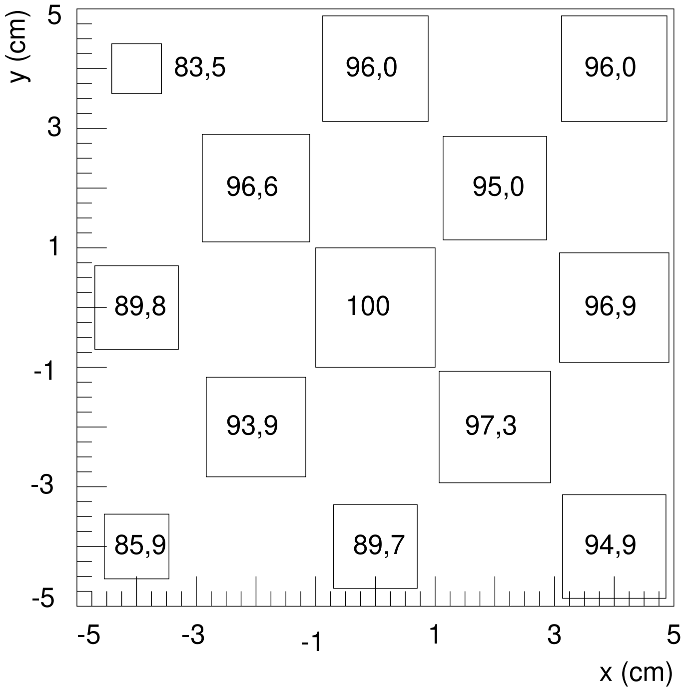

Abbildung 5.3: *Relative Dosisverteilung der Röntgenröhre auf einer 10 × 10 cm^2 großen Fläche in 32 cm Abstand vom Fokus; der Fokus befindet sich senkrecht über dem Punkt (0,0) in der Darstellung [Bus97].*

mission und auf die Farbstoffe ist jedoch nur möglich, wenn die Dosisleistung $\dot{D}$ der Röhre nicht zu stark variiert. Dabei kommen langsame Schwankungen von $\dot{D}$ genauso in Betracht wie kurzzeitige Sprünge. Letztere haben auch Einfluss auf die Transmissionsuntersuchungen, wenn sich die Dosisleistung zwischen der Datennahme im Probenkanal und der im Referenzkanal spontan ändert. Ein falscher Quotient in Gl. 5.1 wäre die Folge und würde sichere Aussagen verhindern.

Untersucht wurde deshalb die Szintillationslichtentwicklung während einer Bestrahlung eines Szintillators. Eine Änderung der Dosisleistung zieht sofort eine veränderte Fluoreszenzlichtausbeute nach sich. Bildet man die Differenz zwischen jeweils zwei aufeinanderfolgenden aufgenommenen Nullsignalen, die während der Bestrahlung hauptsächlich durch das Fluoreszenzlicht ausgemacht werden, kann man aus der Verteilung der Differenzen die kurzfristige Dosisleistungsänderung der Röntgenröhre ableiten[6].

Wie in Abb. 5.4 ersichtlich, liegt die Streubreite der Differenz zum vorherigen Wert, der ca. 6 Sekunden zuvor aufgenommen wurde, nur bei 0,4 ADC-Kanälen. Die Aussteuerung des Photomultipliers lag im Experiment bei etwa 200 ADC-Kanälen, die Abweichung damit bei ca. 2 ‰. Spontane Sprünge in der Dosisleistung der Röntgenröhre, die eine Fluoreszenzsignaländerung von mehr als 3 Kanälen hervorrufen, kamen in der etwa 17-stündigen Bestrahlungsdauer zehnmal vor, die maximale Differenz liegt bei 7,1 ADC-Kanälen, also ca. 4 %. Einflüsse der spontanen Verände-

---

[6] Der zeitliche Abstand der Datennahme zwischen zwei Nullsignalen ist vergleichbar mit dem zwischen Proben- und Referenzsignal.

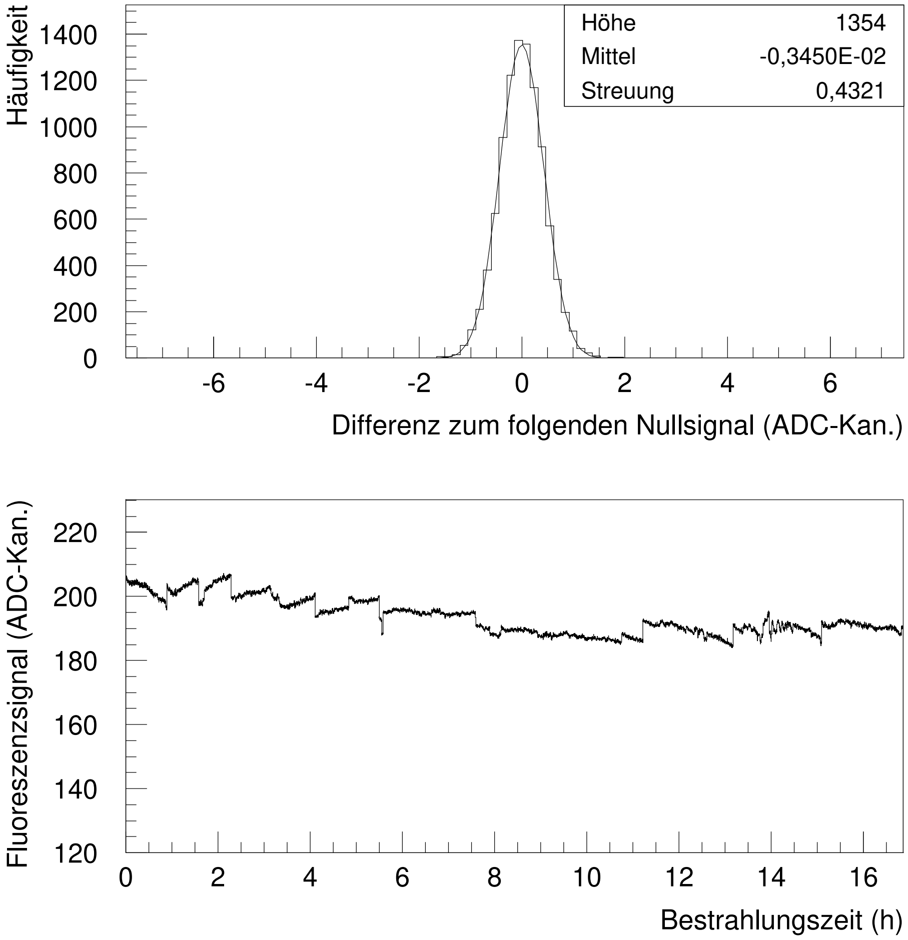

Abbildung 5.4: *Oben: Häufigkeitsverteilung der kurzfristigen Streuung der ADC-Werte des „Nullsignals"(Fluoreszenzlichtsignals) einer 16,8-stündigen Bestrahlung von SCSF-81. Zwei aufeinanderfolgende Werte streuen im Mittel um $\sigma = 0{,}43$ ADC-Kanäle. Unten: Das Szintillationslichtsignal der Messung am Photomultiplier.*

rung der Dosisleistung auf die Transmissionsmessungen können mit der gewählten Messprozedur der um einige Sekunden verschobenen Aufnahme von Proben- und Referenzkanal als sehr gering eingestuft werden. Die Dosisleistungssprünge haben dagegen sehr wohl negativen Einfluss auf die Messsicherheit der direkt aufgenommenen Szintillationslichtausbeute (vgl. auch Abschnitt 6.3.3 und 6.4.3).

Der beobachtete längerfristige Rückgang des Fluoreszenzlichtes in Abb. 5.4 unten ist mit einer Schädigung der Faser durch die Röntgenstrahlung zu erklären. Aus den Beobachtungen des Szintillationslichtsignals kann auf eine Variation der Dosisleistung von ±3 % geschlossen werden.

5.3 Verwendete Dosimeter

Amber Perspex 3042D

Als Dosimeter eignet sich für den Dosisbereich bis zu einigen kGy das kommerzielle Amber Perspex 3042D der Firma Harwell Laboratory[7]. Es deckt einen Bereich von 1 bis 30 kGy ab und besteht aus rot gefärbtem PMMA, welches durch Bestrahlung seine Absorption von sichtbarem Licht ändert. Gemessen wird die Absorption bei den Wellenlängen 603 nm für einen Dosisbereich von 1–10 kGy und 651 nm für den Bereich 1–30 kGy. Da alle durchgeführten Bestrahlungsdosen unterhalb von 10 kGy lagen, wurde aufgrund der größeren Empfindlichkeit die Wellenlänge von 603 nm ausgewertet. Die Abhängigkeit der Absorption von der applizierten Dosis liegt in tabellarischer Form vor und kann mit einem Polynom dritten Grades angenähert werden. Dieses liefert den folgenden Zusammenhang zwischen Dosis D, Absorption A und Dosimeterdicke d:

$$\begin{aligned} D &= -0,4514 + 2,346 \cdot \frac{A(603\text{nm})}{d} - \\ &\quad - 0,004474 \cdot \left(\frac{A(603\text{nm})}{d}\right)^2 + 0,013 \cdot \left(\frac{A(603\text{nm})}{d}\right)^3 \quad . \qquad (5.2) \end{aligned}$$

Der Fehler der Dosisbestimmung liegt laut Hersteller bei 5 %. Die verwendeten Amber Perspex Dosimeter sind zwischen 2,6 und 3,2 mm dick. Sie sind in Kunststoff-Aluminium-Beutel verpackt, um sie vor Feuchtigkeit zu schützen und in definierter Gasatmosphäre zu halten. Dies soll ein vorzeitiges Ausbleichen der strahleninduzierten Färbung verhindern.

Bei den durchgeführten Langzeitbestrahlungen zeigten die Perspex Dosimeter jedoch in dieser Hinsicht eine deutliche Schwäche, die eine Reproduzierbarkeit der Dosismessungen unwahrscheinlich macht. In verschlossenem Beutel wurde bereits eine erhebliche Ausheilung festgestellt, die wahrscheinlich mit Eindringen von Sauerstoff von den Seiten als sichtbare Front im PMMA voranschreitet.

Das in Abb. 5.5 dargestellte Dosimeter war in einer Dreifachbestrahlung eingesetzt, die sich über ca. 10 Tage erstreckte. Bereits während des Experiments zeigte es Ausheilungserscheinungen. Die Ausheilfront war während der Zeit bis zur Auswertung etwa um 0,1 bis 0,2 mm ins Material vorgedrungen. Bei Langzeitexperimenten ist deshalb ein Einsatz der Amber Perspex 3042D fraglich. Die gemessenen Dosen sind sicherlich mit größeren Fehlern behaftet als vom Hersteller angegeben, die sich bei Bestrahlungen auswirken, bei denen eine schnelle Dosimetrie nicht möglich ist. Die Toleranz der Dosen wird im Vergleich zur Dosimeterangabe mit $^{+10}_{-3}$ % abgeschätzt.

---

[7] Harwell Dosimeters, 540 Becquerel Avenue, Didcot Oxon OX 11 0RA, GB

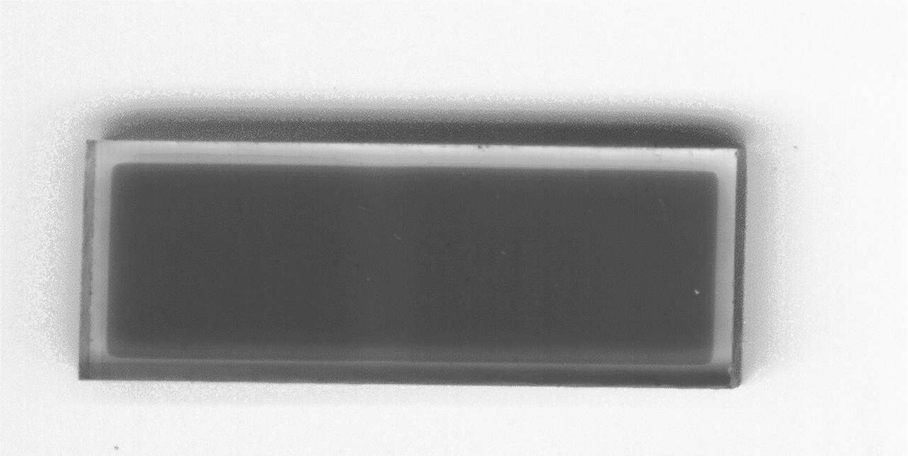

Abbildung 5.5: *Verwendetes Perspex-Dosimeter nach einer 3-fach-Bestrahlung über 10 Tage. Deutlich ist ein Rückgang der Verfärbung zu sehen, die für eine Aussage über die Dosis herangezogen wird. Eine solche Ausheilung wurde in schwächerer Form bereits im Folienbeutel vor der Auswertung beobachtet.*

Alanin

Aus oben genannten Gründen wurde neben der Perspex-Dosimetrie eine vergleichende Dosimetrie mit Alanin durchgeführt. Die verwendeten runden Alaninstränge der Firma Alcatel[8] haben einen Durchmesser von ca. 4,8 mm und wurden in 3 cm lange Stücke geschnitten. Sie bestehen zu 33 (Gewichts-) % aus EPR (Ethylen-Propylen-Rubber) als Trägerstoff und zu 67 % aus DL-α-Alanin (CH_3–$CH(NH_2)$–$COOH$).

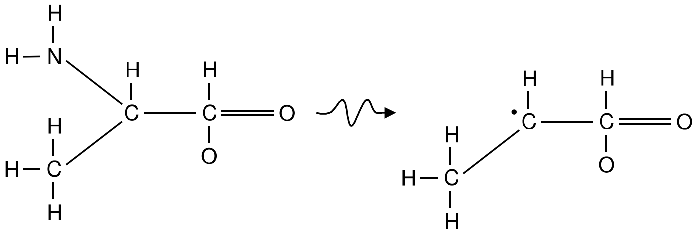

Abbildung 5.6: *Chemische Strukturformel des verwendeten DL-α-Alanin. Ionisierende Strahlung spaltet die NH_2-Gruppe ab und bildet so eine sehr stabile radikalische Stelle.*

In diesem Stoff bilden sich bei Bestrahlung Radikale, die eine hohe Stabilität aufweisen (s. Abb. 5.6). Auch Monate nach der Bestrahlung nimmt die Radikalkonzentration nicht messbar ab. Diese Dosimeter können mit Hilfe eines Elektron-Spin-Resonanz-Spektrometers (ESR) ausgewertet werden. Die Konzentration der entstandenen Radikale ist im Bereich von 10 bis 10^5 Gy monoton steigend und im Bereich von einigen 10 Gy bis hin zu einigen kGy annähernd proportional zur applizierten

---

[8] Alcatel Kabel Beteiligungs-AG, Kabelkamp 20, D-30179 Hannover

Dosis. Das Antwortverhalten des ESR-Signals auf eine applizierte Dosis wird mit einem Polynom 3. Grades angepasst (vgl. Abschnitt 5.4.2).

5.4 ESR-Untersuchungen

5.4.1 Grundlagen der ESR

Radikale in einem Stoff gehen stets mit ungepaarten Elektronen einher. Weist man die Konzentration von ungepaarten Elektronen in einer Probe nach, bilden sie ein Maß für das Auftreten der radikalischen Stellen im Stoff.

Die Messmethode der Elektron-Spin-Resonanz nutzt die Fähigkeit der in einem Atom gebundenen Elektronen aus, ihren Spin in einem äußeren Magnetfeld auszurichten. Durch den Spin wirken sie als magnetische Dipole, die sich im Magnetfeld so ausrichten, dass ihre Spinachse um die Magnetfeldrichtung präzediert. Ist das Elektron in der Hülle gepaart, d. h. existiert ein Elektron mit entgegengesetztem Spin auf der Schale, kompensieren sich so deren beider magnetischen Momente. Ist das Elektron jedoch ungepaart, tritt ein paramagnetisches Verhalten des Stoffes zu Tage, welches die Möglichkeit der Elektron-Spin-Resonanz-Messung bietet. Das magnetische Moment $\vec{\mu}_e$ eines freien[9] Elektrons mit dem Spinvektor $\vec{S}$ ist:

$$\begin{aligned} \vec{\mu}_e &= -g_e \cdot \mu_b \cdot \vec{S} \quad , && (5.3) \\ &\text{mit} \\ g_e &= 2,002319;\ \text{g-Faktor des freien Elektronenspins und} \\ \mu_b &= 9,27410 \cdot 10^{24}\ \mathrm{JT}^{-1};\ \text{Bohrsches Magneton} \ . \end{aligned}$$

Der g-Faktor oder Landé-Faktor hängt von der Art der Bindung des Elektrons ab und ergibt sich dabei allgemein aus dem Gesamtdrehimpuls J, dem Bahndrehimpuls L und dem Eigendrehimpuls S des Elektrons:

$$g_e = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \quad . \tag{5.4}$$

Die zusätzliche Energie E eines solchen Elektrons in einem magnetischen Feld mit Feldvektor $\vec{B}$ ist dann:

$$E = -\vec{\mu}_e \cdot \vec{B} \quad . \tag{5.5}$$

Durch Einsetzen der Gleichung 5.3 folgt daraus:

$$E = g_e \cdot \mu_b \cdot \vec{S} \cdot \vec{B} \quad . \tag{5.6}$$

---

[9] Frei ist hier im Sinne von ungepaart zu verstehen; das Elektron ist sehr wohl im Atom gebunden.

Durch die beiden Spinausrichtungsmöglichkeiten mit Quantenzahl $s = \pm 1/2$ ergibt sich in einem Magnetfeld eine Energieaufspaltung nach dem Zeeman-Effekt. Das Elektronenergieniveau E_0 (bei $\vec{B} = 0$) spaltet in zwei Energien E_1 und E_2 auf:

$$E_1 = E_0 + \frac{1}{2} \cdot g_e \cdot \mu_b \cdot B \quad \text{und} \quad E_2 = E_0 - \frac{1}{2} \cdot g_e \cdot \mu_b \cdot B \quad . \tag{5.7}$$

Die Energiedifferenz der beiden Zustände ist dann:

$$\Delta E = E_1 - E_2 = g_e \cdot \mu_b \cdot B \quad . \tag{5.8}$$

Ist dem von außen angelegten Magnetfeld $\vec{B}$ zusätzlich ein senkrecht dazu liegendes Wechselfeld überlagert[10], kann ein Übergang des Elektrons zwischen den beiden Energiezuständen E_1 und E_2 angeregt werden. Dabei kann es zu einer Resonanz kommen, die eintritt, wenn die Energie des magnetischen Wechselfeldes mit der Energiedifferenz ΔE der Niveaus übereinstimmt:

$$\begin{aligned} \Delta E &= h \cdot \nu = g_e \cdot \mu_b \cdot B \quad , && (5.9) \\ &\text{bzw.} \\ g_e &= \frac{h \cdot \nu}{\mu_b \cdot B} \quad . && (5.10) \end{aligned}$$

Im Resonanzfall wird für eine maximale Umbesetzung der Energieniveaus gesorgt. Dabei wird dem von außen angelegten Magnetfeld Energie entzogen, die gemessene Absorptionskurve kann als Funktion des g-Faktors aufgenommen werden. Bei fester Frequenz ν des Wechselfeldes und einer Variation des B-Feldes ergibt sich eine Gauß-förmige Verteilung der Absorption um den Wert $B_0 = h\nu / g_e \mu_b$.

Damit es allerdings zu einer messbaren Absorption, also einer großen Zahl von Umbesetzungen kommt, müssen die Energieniveaus E_1 und E_2 unterschiedlich stark besetzt sein. Die Besetzungswahrscheinlichkeit wird im Fall der in einem Atom lokalisierten Elektronen durch die Boltzmann-Statistik beschrieben:

$$\frac{N(E_1)}{N(E_2)} = \exp\left(\frac{\Delta E}{k_B \cdot T}\right) = \exp\left(\frac{g_e \cdot \mu_b \cdot B}{k_B \cdot T}\right) \tag{5.11}$$

mit

k_B = 1,38062 $\cdot 10^{-23}$ JK^{-1}; Boltzmannkonstante und

T = Temperatur .

Die Intensität des absorbierten Signals ist proportional zur Besetzungsdifferenz Δn und damit umgekehrt proportional zur Temperatur:

---

[10] Dies wird technisch i. Allg. durch Einstrahlung einer elektromagnetischen Welle im Mikrowellenbereich erzielt.

$$\Delta n = N(E_1) - N(E_2) = \frac{N \cdot g_e \cdot \mu_b \cdot B}{2 \cdot k_B \cdot T} \quad . \tag{5.12}$$

$N = N(E_1) + N(E_2)$ ist die Gesamtanzahl ungepaarter Elektronen in beiden Populationen. Eine maximale Besetzungsdifferenz ergibt sich also bei Temperaturen nahe 0 Kelvin, aber auch das bei Raumtemperatur vorliegende Δn macht eine messbare Umbesetzung und damit eine ESR-Messung möglich[11].

Die Übergangswahrscheinlichkeit steigt so lange proportional zur Energiedichte des eingestrahlten Wechselfeldes, bis die Besetzungszahlen der beiden Zustände von ähnlicher Größe sind und damit eine Sättigung eintritt. Sind die Besetzungszahlen gleich, wird bei Übergängen gleich viel Energie absorbiert wie emittiert, die Absorption des Wechselfeldes verschwindet.

Eine aufwendigere Betrachtung ergibt sich dadurch, dass die Elektronen in zu untersuchenden Proben nicht frei, sondern im gebundenen Zustand vorliegen. Sie befinden sich im Feld eines oder mehrerer Atomkerne, die ihren Spin ebenfalls parallel oder antiparallel zum äußeren Magnetfeld ausrichten können. Durch die Wechselwirkung der magnetischen Momente der Kerne und des Elektrons (Hyperfein-Wechselwirkung) kommt zum äußeren Magnetfeld B_0 ein vom magnetischen Moment des Kerns ausgehendes inneres Magnetfeld B_I hinzu, das ebenfalls vom Elektron wahrgenommen wird. Je nach Ausrichtung des Kernmoments befindet sich das Elektron so in einem

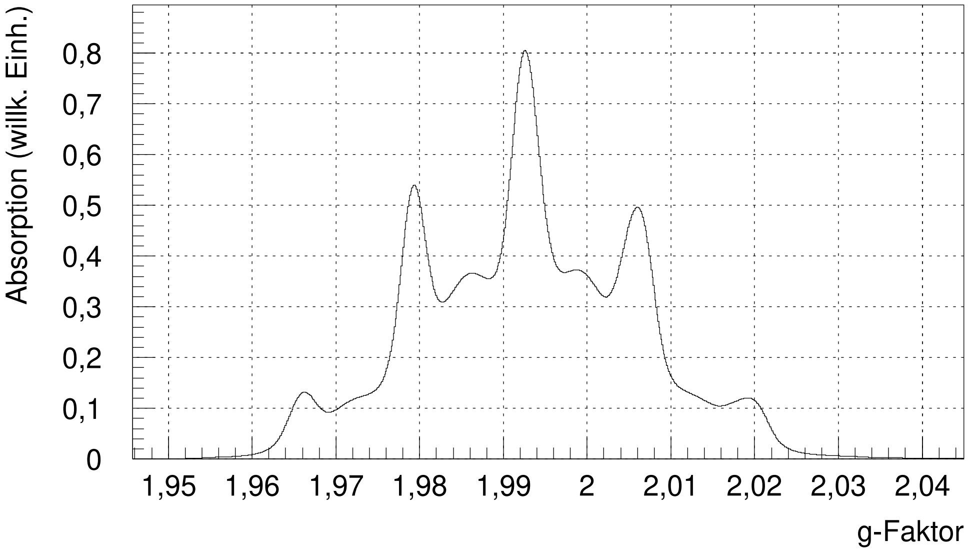

Abbildung 5.7: *ESR-Absorptionssignal einer mit 900 Gy bestrahlten PMMA-Probe, aufgetragen gegen den g-Faktor (Gl. 5.10).*

---

[11] Eine starke Temperaturerhöhung der Probe durch die Absorption der eingestrahlten Mikrowelle verändert jedoch die Besetzungszahlenverhältnisse merklich. Die absorbierte Leistung der Probe (Mikrowellenleistung) sollte deshalb so klein sein, dass sich die Probe während der Messung im thermischen Gleichgewicht mit ihrer Umgebung befindet.

Magnetfeld $B_0 + B_I$ bzw. $B_0 - B_I$. Man kann gemittelt über alle Radikale von einer Gleichverteilung der beiden Zustände ausgehen. Für diesen Fall findet eine Hyperfeinaufspaltung der einfachen Gauß-förmigen Absorptionslinie in zwei Verteilungen um die beiden resultierenden Magnetfeldstärken statt. Diese sind symmetrisch um B_0 mit dem Abstand B_I angeordnet. Für verschieden stark gebundene ungepaarte Elektronen in der Probe verkompliziert sich das Spektrum der Magnetfeldabsorption weiter charakteristisch für das Material, was bis hin zur Identifikation des Umfeldes der radikalischen Stellen führen kann. Für das in PMMA entstehende Radikal ergibt sich ein typisches Absorptionsspektrum, welches in Abb. 5.7 dargestellt ist; das Signal der Dosimeter aus Alanin ist in Abb. 5.9 im nächsten Abschnitt ersichtlich.

5.4.2 Dosisbestimmung mit Alanin

Das für die Alanin-Dosimetrie sowie für die Beobachtung von Radikalen in den untersuchten Polymerproben (s. Kap. 6.6.4) verwendete Gerät ist das Modell ECS-106 des Herstellers Bruker[12]. Eine Skizze des prinzipiellen Aufbaus ist in Abb. 5.8 dargestellt.

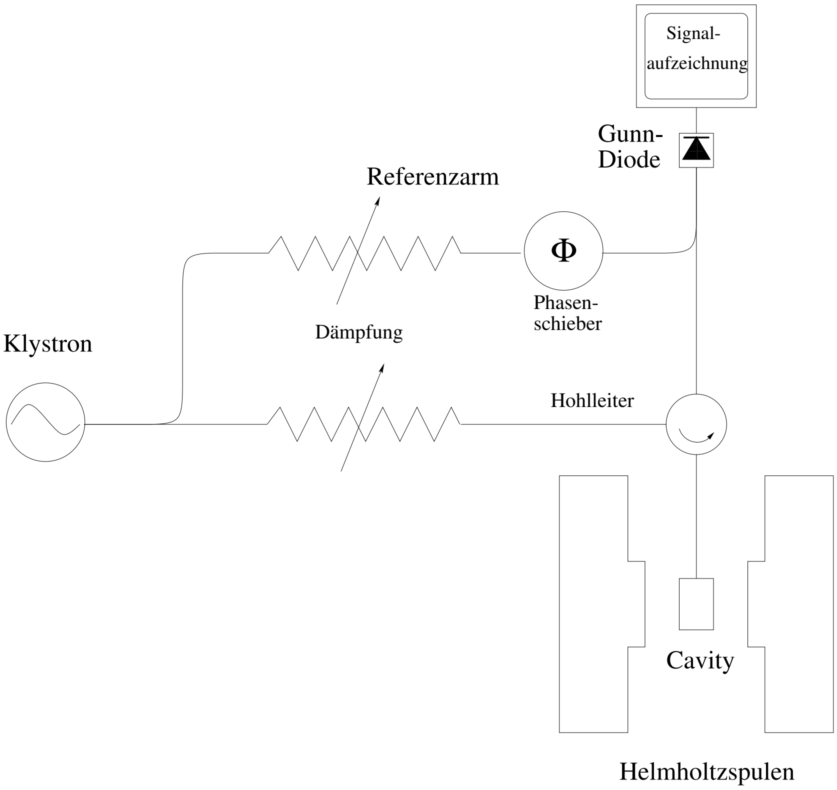

Abbildung 5.8: *Schematischer Aufbau des ESR-Spektrometers. Beschreibung siehe Text.*

Der Probenraum, die sog. Cavity, ist ca. $6 \times 2 \times 3\,\mathrm{cm}^3$ groß und befindet sich zwischen zwei Helmholtz-Spulen, die das im Bereich der Kavität homogene, sehr stabile Magnetfeld B_0 mit einer Stärke von 0,4 Tesla erzeugen. Die resonanz-induzierende

---

[12] Bruker BioSpin GmbH, Silbersteifen, D-76287 Rheinstetten/Karlsruhe

elektromagnetische Welle wird von einem Klystron produziert. Sie liegt im X-Band-Bereich bei ca. 9,5 GHz und wird durch Hohlleiter an die Cavity transportiert. Mikrowellen bieten den Vorteil, dass sie i. Allg. tief ins Material eindringen können und nicht bereits an der Oberfläche absorbiert werden. Die Frequenz der Mikrowelle ist nur in engen Bereichen variabel, allein aufgrund der geometrischen Verhältnisse der Hohlleiter, deren Ausmaße für die Übertragung im X-Band optimal sind. Über eine einstellbare Irisblende wird die Mikrowelle derart in die Cavity gespeist, dass im Probenraum eine stehende Welle angeregt wird. Dabei bildet sich am Ort der Probe eine maximale Magnetfeldstärke aus, während das elektrische Feld minimal ist. Somit hat ein dielektrischer Charakter der Probe keinen Einfluss auf die Messung[13]. Die Richtung der Magnetfeldlinien der Mikrowelle stehen senkrecht zum äußeren Magnetfeld. Die nicht absorbierte Mikrowellenenergie wird reflektiert und gelangt wiederum über Hohlleiter zur sog. Gunn-Diode, dem Detektor, mit dem die Mikrowellenleistung gemessen wird. Zur Optimierung der Messung wird bereits hinter dem Klystron ein Teil der Mikrowellenleistung ausgekoppelt und in einem „Referenzarm“ über ein Dämpfungsglied und einen Phasenschieber direkt auf die Detektordiode geleitet. So wird erreicht, dass durch die Diode stets ein bestimmter Strom fließt, damit sie mit optimaler Empfindlichkeit im linearen Bereich arbeitet.

Um eine wesentlich höhere Empfindlichkeit des Spektrometers zu erreichen, wird in diesem Gerät nicht, wie theoretisch ausreichend, bei fester Mikrowellenfrequenz das Magnetfeld langsam kontinuierlich um den Bereich der Resonanz verändert und dabei über den Strom der Gunn-Diode die absorbierte Mikrowellenleistung bestimmt. Stattdessen wird mit der sog. phasensensitiven Methode gemessen. Dazu wird zusätzlich das langsam veränderliche homogene Feld der Helmholtz-Spulen moduliert. Dies wird durch zwei in die Cavity integrierte kleine Helmholtz-Spulen erreicht. Sie werden durch einen Oszillator mit einer Frequenz von 50 kHz betrieben und arbeiten mit einstellbarer Amplitude im Bereich von 0,3 mT. Mit einer durch denselben Oszillator gesteuerten phasensensitiven Diode wird jetzt nicht direkt der Diodenstrom aufgenommen, sondern die Diodenstromänderung in Abhängigkeit von der Magnetfeldoszillation.

Als Messsignal ergibt sich so die Differentiation des Absorptionssignals nach dem Magnetfeld. Das Absorptionssignal kann durch Integration dargestellt werden (s. Abb. 5.9). Eine weitere Integration ergibt als Maximalwert die Fläche unter der Absorptionskurve. Diese ist bei geeigneter Kalibrierung ein Maß für die Zahl der ungepaarten Elektronen und damit für die Menge an Radikalen in der Probe.

Für eine allein stehende Dosimetrie mit Alanin ist eine Kalibration des verwendeten ESR-Gerätes erforderlich, die in [Bod97] vorgenommen wurde. Dabei wurden kalibrierte Proben vermessen, die mit einer ^{60}Co-Quelle bestrahlt wurden. Das Antwortverhalten des ESR-Gerätes auf verschiedene Dosen wurde aufgetragen und mit einem Polynom 3. Grades angepasst. Um eine höhere Reproduzierbarkeit und kleinere Fehler zu erreichen, wird abhängig von der absoluten Dosis entweder das Integral des ESR-Absorptionssignals oder die Distanz der größten Spitzen („Peak-to-Peak-Methode“, s. Abb. 5.9) als Maß für die Dosis herangezogen Die Peak-to-Peak-Methode, die nicht so empfindlich auf ein Driften der Basislinie reagiert, wird

---

[13] Wasserhaltige Proben könnten ansonsten durch die hohe Dielektrizitätszahl von $\varepsilon_{H_2 0} = 81$ die Mikrowellenlänge stark verringern, was zu einer Zerstörung der Resonanz führt.

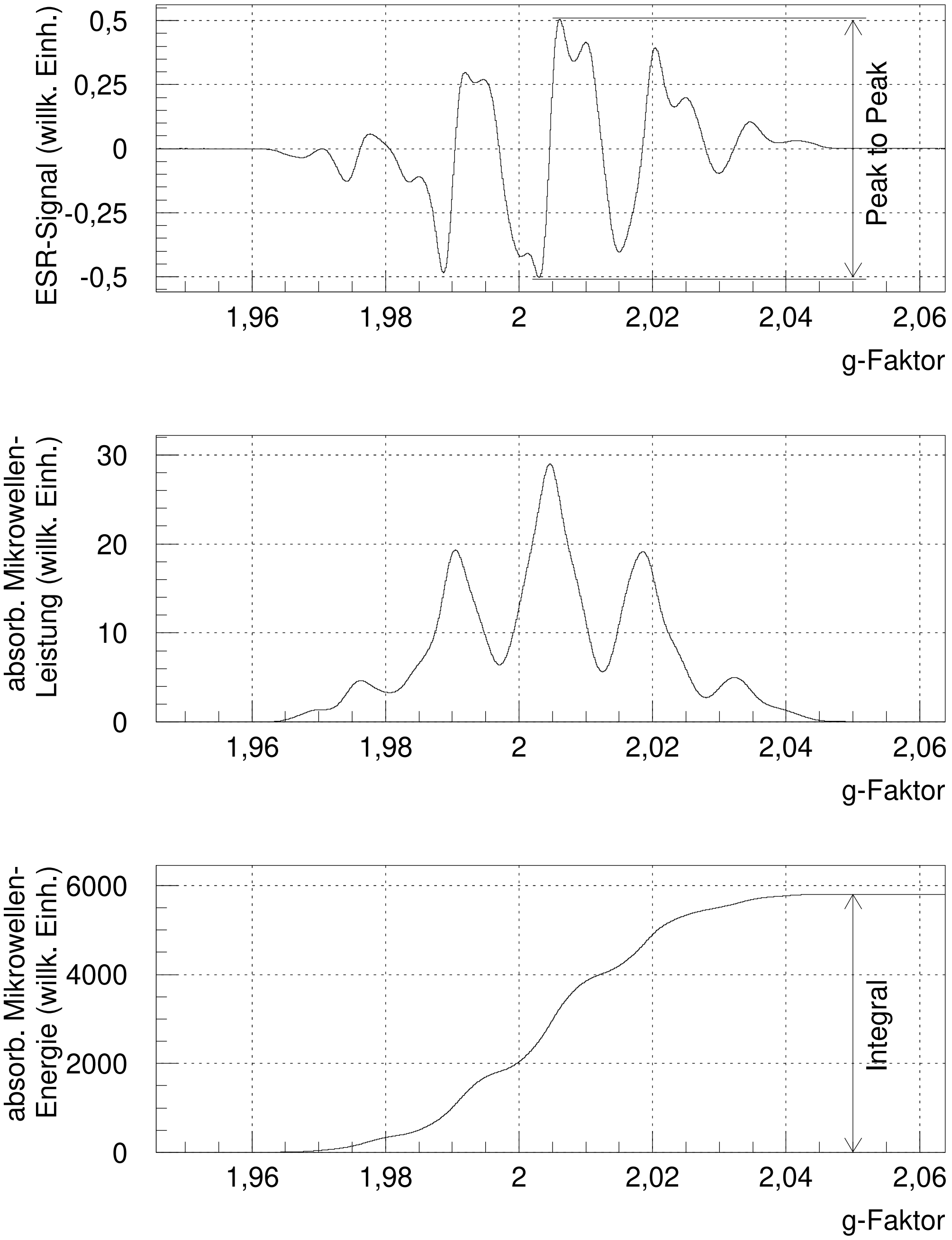

Abbildung 5.9: *Oben: ESR-Messsignal von bestrahltem Alanin, aufgetragen gegen den g-Faktor (Gl. 5.10). Mitte: Integration ergibt das Absorptionssignal. Unten: Eine weitere Integration führt zur Aussage über die Menge der Radikale in der Probe. Die Pfeile symbolisieren die beiden Methoden der Auswertung.*

für Dosen unter 500 Gy bevorzugt. Für Dosen über einem halben kGy wird die Integralmethode angewandt.

Um eine hohe Reproduzierbarkeit der Daten zu erreichen und so eine gute Vergleichbarkeit der relativen Dosen zu erhalten, wurde die vorliegende Alanin-Dosimetrie mit den vorhandenen Perspex Dosimeter-Daten verglichen sowie auf eine Referenzprobe bezogen, die mit monoenergetischer ^{60}Co-Strahlung mit einer Dosis von 4,47±0,05 kGy bestrahlt wurde. Sie wurde vor und nach jeder Messung der röntgenbestrahlten Alanine mit vermessen und ihre Abweichung im Antwortverhalten von der applizierten Dosis wurde als Korrekturfaktor in die Alanindosis eingebracht.

5.5 Dosisdepositionen in verschiedenen Materialien

Da die Kalibration des ESR-Gerätes mit ^{60}Co-bestrahlten Proben durchgeführt wurde, ist das spezielle Antwortverhalten von Alanin auf das verwendete Röntgenspektrum untersucht worden. Ein Vergleich des Absorptionsverhaltens des Alanin-EPR-Gemisches mit den ebenfalls verwendeten Amber Perspex Dosimetern wurde mit der Software PHOTCOEF© durchgeführt. Die Zusammensetzung der beiden Dosimeter aus ähnlich schweren Bestandteilen hat ähnliche Wechselwirkungsprozesse zur Folge. Die Dichte der Alaninproben liegt jedoch mit $\varrho_{\text{Alanin}} = 1{,}06\,\text{g/cm}^3$ niedriger als die des PMMA der Perspex-Dosimeter. Die applizierte Röntgen-Dosis liegt für das in EPR eingebettete Alanin um ca. 3,5 % unter der von PMMA. Für eine Berechnung der Röntgendosen in den verwendeten Grundmaterialien, falls keine Dosimeter aus demselben Material zur Verfügung stehen, sind in Tab. 5.1 die Umrechnungsfaktoren der verwendeten Materialien für Bestrahlungen in Luft mit dem 100-keV-Spektrum der Röntgenröhre aufgeführt. Zusätzlich sind die Werte für die Thermolumineszenzdosimeter TLD700 und TLD800 angegeben (aus [Bus97]), die sich insbesondere für geringe Dosen eignen.

$D_{\text{TLD700}} : D_{\text{TLD800}}$	1,39
$D_{\text{TLD800}} : D_{\text{PMMA}}$	1,61
$D_{\text{TLD700}} : D_{\text{PMMA}}$	2,24
$D_{\text{PMMA}} : D_{\text{Alanin}}$	1,04
$D_{\text{PMMA}} : D_{\text{Polystyrol}}$	1,35

Tabelle 5.1: *Dosisdepositionen in unterschiedlichen Dosimetertypen und Materialien für 100-keV-Röntgenstrahlung bei Bestrahlung in Luft.*

Die große Diskrepanz zwischen PMMA/Perspex und Polystyrol tritt dadurch auf, dass die durch die Röntgenstrahlung hervorgerufenen Effekte im Material hauptsächlich Compton- und Photoeffekt sind (vgl. Abb. 3.4), die sehr stark von der Ordnungszahl des Absorbermaterials abhängen; dies gilt insbesondere für den Photoeffekt. Durch den Sauerstoffanteil im PMMA ist dessen Ordnungszahl effektiv größer als die von Polystyrol. Alanin und PMMA sind sich im Absorptionsverhalten ähnlich.

Kapitel 6

Durchgeführte Untersuchungen

6.1 Vorbemerkungen

Durch Schädigung mit ionisierender Strahlung entstehen in polymerischen Fasern Radikale und evtl. andere Zentren, die optische Absorptionen hervorrufen können. Der spektrale Bereich der Absorption kann von Sorte zu Sorte der Absorptionszentren unterschiedlich sein. Radikalische Zentren reagieren teilweise weiter zu Folgeprodukten, wodurch es zu einer Veränderung des Absorptionsverhaltens der Fasern während und nach der Bestrahlung kommen kann. Dabei wird im Folgenden von einem Maximalschaden der Faser gesprochen, wenn die strahleninduzierte Absorption $\Delta\mu$ ihren größten Wert erreicht (was in der Regel am Ende einer Bestrahlung der Fall ist)[1]. Von einem Permanentschaden der Faser ist die Rede, wenn im Beobachtungszeitraum nach der Bestrahlung die Ausheilung offensichtlich abgeschlossen ist, d. h. die Größe $\Delta\mu$ sich höchstens noch im Rahmen der Messungsschwankungen verändert. Ist die Ausheilung in der Experimentierzeit noch nicht abgeschlossen, wird der noch vorhandene Schaden als Endschaden bezeichnet. In diesem Fall wäre ein Permanentschaden über eine Anpassung extrapoliert.

Alle Experimente wurden in Luft als umgebende Atmosphäre durchgeführt, die Versorgung mit Sauerstoff in der Faser ist allein durch die Diffusionsgeschwindigkeit begrenzt[2].

Für Szintillatorfasern ist das Absorptionsverhalten im spektralen Bereich des Szintillationslichtes der interessanteste Faktor, der direkt Einfluss auf die Einsatzmöglichkeit des Szintillators zur Energiemessung in Teilchendetektoren hat. Außerdem ist es wichtig, die Einflüsse von Strahlung auf das Basismaterial zu kennen. Im Weiteren soll daher zunächst das generelle Verhalten von Polystyrol unter Strahlenbelastung am Beispiel der Lichtleitfaser BCF-98 diskutiert werden. Anschließend werden die Schadensentwicklungen in verschiedenen Szintillatoren auch in Bezug auf deren Szintillationsspektrum dargestellt. Zum Ende wird das Verhalten der aus PMMA bestehenden Lichtleitfaser vorgestellt.

---

[1] Bei mehrfachen Bestrahlungen während einer Beobachtung kann auch von mehreren Maximalschäden die Rede sein, die sich dann auf die jeweilige Bestrahlung beziehen.

[2] Einzige Ausnahme ist eine Bestrahlung von BCF-98 in Inertgas mit anschließender Ausheilung in Luft, die zum Vergleich mit unabhängigen Daten herangezogen wird (vgl. Abschnitt 6.2.5).

Die Datensätze, die den Abbildungen zugrunde liegen sowie ein Verzeichnis der durchgeführten Bestrahlungen sind in Anhang B.2 zu finden.

6.2 Polystyrol-Lichtleiter BCF-98

6.2.1 Einfluss von Sauerstoff

Wie in vielen bisher untersuchten Fasern wurde auch in BCF-98 ein grundsätzlich positiver Einfluss von in der Faser gelöstem Sauerstoff festgestellt. Dieser macht sich sowohl während als auch nach einer Bestrahlung mit Röntgenquanten in einem geringeren Anstieg der optischen Absorption wie in einer schnelleren Ausheilung bemerkbar. Zudem ist das Gesamtschadensniveau erheblich geringer.

Bisherige Studien, wie z. B. für die Szintillatorfaser BCF-12 [Bus97, Zou97] zeigen, dass in der Faser gelöster Sauerstoff in der Lage ist, anscheinend konzentrationsunabhängig eine stark ansteigende optische Absorption so lange zu verhindern, bis er durch chemische Prozesse vollständig gebunden ist.

Viele Experimente beschäftigen sich mit der Schädigung von Polymeren. Zur Bestimmung der Abhängigkeit eines Strahlenschadens von äußeren Bedingungen wie Temperatur, Umgebungsatmosphäre u. Ä. werden meist hohe Dosen in kurzer Zeit verabreicht. Im Gegensatz zu solchen bisherigen Experimenten soll hier die gute Übertragbarkeit der Ergebnisse auf den Einsatz der Fasern im Hochenergieexperiment in den Vordergrund gestellt werden. Die Dosisleistungen, denen Szintillatoren in Detektoren ausgesetzt sind, liegen in der Regel deutlich niedriger als die in Strahlenresistenztests. Dies lässt für den Fall, dass die Fasern von Luft umgeben sind, die Annahme gelten, dass immer Sauerstoff in der Faser enthalten ist[3].

Aus Zeitgründen wird in Strahlenresistenztests stets mit einer relativ hohen Dosisleistung bestrahlt, um den Schädigungsprozess zu beschleunigen. Deshalb tritt die wichtige Frage auf, ob der in der Faser gelöste Sauerstoff in der beschleunigten Bestrahlung bereits verbraucht bzw. chemisch gebunden ist, was eine Vergleichbarkeit mit dem Einsatz im Detektor verschlechtert.

Zur Bestimmung der Röntgendosis, bei der sämtlicher Sauerstoff in der Faser verbraucht ist, wurden Proben hoher Dosis ausgesetzt. Abb. 6.1 zeigt eine Bestrahlung, in der eine BCF-98-Faser mit insgesamt 6 kGy bei einer Dosisleistung von 128 Gy/h bestrahlt wurde.

Bestrahlungszeitraum

Links in Abb. 6.1 ist der Zeitverlauf der Bestrahlung am Beispiel der Wellenlänge von 450 nm zu sehen. Ab Beginn der Bestrahlung (t = 0 h) entstehen Absorptionszentren. Nach einer Einlaufzeit von ca. 10 Stunden mit starkem Absorptionsanstieg läuft die Entstehung der ausheilenden Absorptionszentren in eine Sättigung und der Anstieg

---

[3] Das ist bei vielen Detektoren der Fall; nur selten werden die Fasern in Inertgasatmosphäre gehalten.

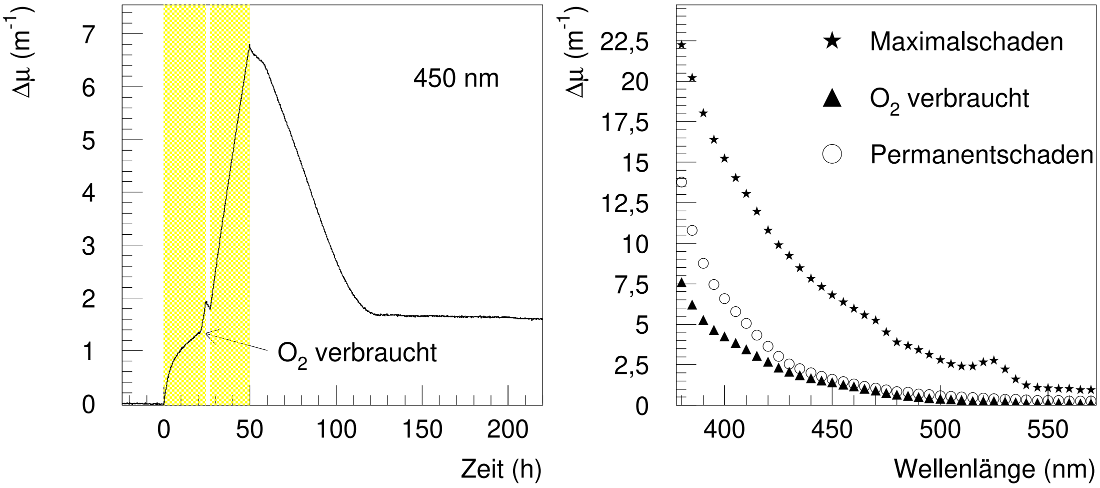

Abbildung 6.1: *Bestrahlung einer BCF-98-Faser. $D = 6\,kGy$, $\dot{D} = 128\,Gy/h$. Links: Zeitverlauf der induzierten Absorption bei $\lambda = 450\,nm$. Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben. Pfeil: Der gelöste Sauerstoff ist verbraucht. Rechts: Spektren der Absorption zum Zeitpunkt des kompletten Sauerstoffverbrauchs während der Bestrahlung ($D = 2{,}7\,kGy$, $t = 21{,}3\,h$), zum Ende der Bestrahlungen ($D = 6\,kGy$, $t = 49{,}\,h$) sowie des Permanentschadens, der nach vollständiger Ausheilung ($t > 130\,h$) erhalten bleibt.*

wird linear. Zur Zeit $t = 21{,}3\,h$ gibt es jedoch einen Knick in der Absorptionsentwicklung (Pfeil in Abb. 6.1), die Steigung nimmt deutlich zu. Hier ist der in der Faser gelöste Sauerstoff verbraucht, und sein positiver Einfluss auf die Schadensentwicklung ist beendet. Dieser Knick wurde ebenfalls in der PS-basierten Faser BCF-12 bei Bestrahlungen in Argon-Atmosphäre beobachtet [Bus97, Bus98]. Die Röntgen-Dosis, bei der der Knick auftrat, war in diesen Experimenten abhängig von der Menge des in der Faser gelösten Sauerstoffs, die durch Vorlagerung in verschiedenen Gasatmosphären variiert wurde. Im vorliegenden Experiment mit der Faser BCF-98 nimmt der Schaden von hier an bis zu einem Maximalschaden am Ende der Bestrahlung linear zu (eine vierstündige Bestrahlungsunterbrechung ausgenommen). Ein ähnliches Zeitprofil zeigt sich für alle Wellenlängen, bei denen eine Schädigung sichtbar wird. In Abb. 6.1 rechts sind die spektralen Verteilungen des induzierten Schadens zum Zeitpunkt des vollständigen Sauerstoffverbrauchs ($t = 21{,}3\,h$) und zum Ende der Bestrahlungen zu sehen. Ein sich ohne Sauerstoff ausbildender Peak um 525 nm ist als Schaden der PS-Matrix bekannt [BP91a, Clo88].

Aus dem scharfen Übergang der Schadensentwicklung zum Zeitpunkt, an dem die Sauerstoffkonzentration $[O_2] = 0$ wird, lässt sich die applizierte Dosis bis zum Verbrauch gut bestimmen, wenn die Dosisleistung konstant bleibt. Dies führt hier zu einem Wert von $D_{[O_2]=0} = 2{,}7\,kGy$. Für Bestrahlungen mit geringerer Dosisleistung, in denen größere Mengen Sauerstoffs nachdiffundieren können, steigt der Wert entsprechend leicht an, für $\dot{D} = 44\,Gy/h$ auf $D_{[O_2]=0} = 3{,}0\,kGy$.

Die Produktionsrate von Absorptionszentren lässt sich durch die Steigung des strahleninduzierten Absorptionskoeffizienten pro applizierter Dosis $\mathrm{d}\Delta\mu/\mathrm{dD}$ direkt am Start der Bestrahlung abschätzen. Hier sollten nur die primären Absorptionszentren entstehen; aufgrund ihrer niedrigen Konzentration im Polymer finden noch keine Zerfälle bzw. Folgereaktionen statt. Impliziert ist hier das optische Absorptionsvermögen dieser Zentren im Spektralbereich.

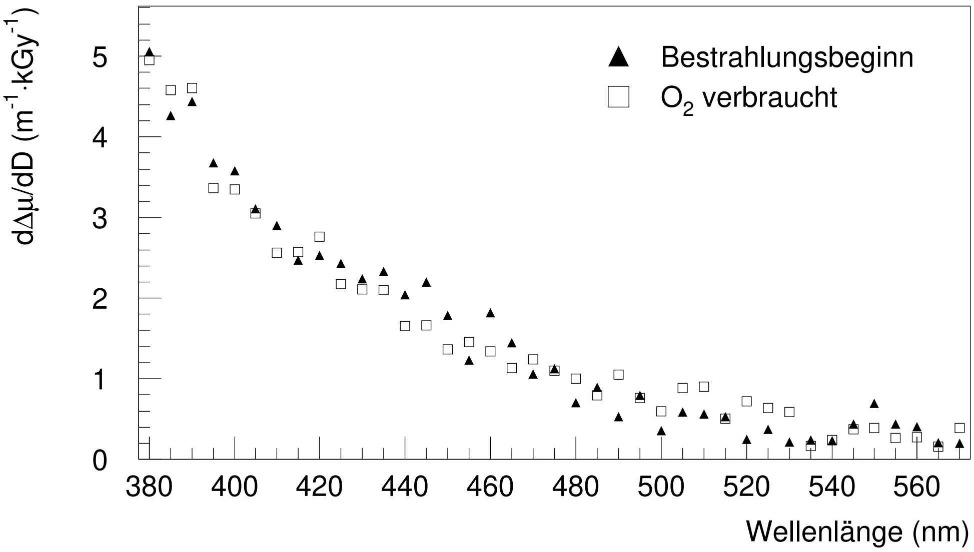

Abbildung 6.2: *Steigung $d\Delta\mu/dD$ der Bestrahlung aus Abb. 6.1 zu Bestrahlungsbeginn und nach dem Zeitpunkt des kompletten Sauerstoffverbrauchs $[O_2] = 0$.*

Die Steigung der Absorption zu zwei verschiedenen Zeiten ist in Abb. 6.2 dargestellt: In den ersten 30 Minuten der ersten Bestrahlung ($\mathrm{D} \approx 0\,\mathrm{Gy}$) und direkt nach dem Zeitpunkt, an dem der Sauerstoff in der Faser verbraucht ist ($\mathrm{D} = 2{,}7\,\mathrm{kGy}$). Nach dem Verbrauch des Sauerstoffs kehrt die Steigung der induzierten Absorption über das gesamte beobachtete Spektrum auf denselben Wert wie zu Beginn der Bestrahlung zurück, während sie bis dorthin im linearen Anstieg mit gelöstem Sauerstoff in der Faser um einen Faktor zwischen 3 und 4 für Wellenlängen bis 450 nm geringer ausfiel. Alleiniger Unterschied ist ein sich nicht signifikant andeutender Absorptionspeak des Polystyrols bei 520 nm.

Die Gleichheit der Spektren kann als starkes Indiz gewertet werden, dass zu Beginn der Bestrahlung dieselben Absorptionszentren entstehen wie sie ohne den Einfluss von Sauerstoff gebildet werden. Dabei ist es offen, ob es sich um die primär erzeugten Radikale oder bereits um Folgeprodukte handelt, die aus diesen entstanden sind. Bei Folgeprodukten würde jedoch nach dem heutigen Verständnis aufgrund seines sehr hohen Reaktionsvermögens der in der Faser gelöste Sauerstoff eine wichtige Rolle spielen und andere Reaktionskanäle unterdrücken. Da jedoch auch in der späteren Bestrahlungsphase ohne ungebundenen Sauerstoff in der Faser offensichtlich dieselben Absorptionszentren entstehen, ist es nahe liegend, dass es sich um die primär erzeugten Radikale handelt, die auch in sauerstoffhaltiger Atmosphäre eine messbare Lebensdauer von Stunden haben, bevor sie weiterreagieren (vgl. Abschnitte 6.2.2, 6.2.7). Sauerstoff lässt diesen primär erzeugten Radikalen den Reaktionskanal zu Peroxidradikalen offen, so dass die bereits während der Bestrahlung eine Reduktion erfahren. Im Gegensatz dazu ist bei $[O_2] = 0$ diese Weiterreaktion unmöglich, und die Radikale zeigen eine hohe Stabilität.

Nach dem Punkt der Sauerstofffreiheit ändert sich die Steigung bis zum Ende der Bestrahlung nicht mehr; die Dosisleistung von 128 Gy/h ist ausreichend groß im Verhältnis zur Diffusionsgeschwindigkeit von Sauerstoff in die Faser.

Ausheilungsphase

Die Ausheilung der Bestrahlung aus Abb. 6.1 teilt sich in drei Phasen:

Direkt nach Abschalten der Bestrahlung findet eine etwa achtstündige leichte Ausheilung des radikalischen Strahlenschadens statt. Allerdings ist durch die Bestrahlung mit hoher Dosisleistung auch im PMMA-Cladding der Faser die Sauerstoffkonzentration zurückgegangen, so dass der Faserkern noch nicht mit eindiffundierendem Sauerstoff versorgt wird. Eventuell vorhandene geringe Mengen noch im Cladding gelösten Sauerstoffs dringen hier bereits in den PS-Kern ein; wahrscheinlich ist der im Cladding gelöste Sauerstoff aber bereits ebenfalls vollständig verbraucht und es kommt zu einem leichten Absorptionsrückgang durch Rekombinationen im Material ohne Sauerstoff.

Etwa 8 h nach Ende der Bestrahlung ist der Sauerstoff der Umgebungsluft von außen durch das Cladding gedrungen, welches bei 2 mm Faserdurchmesser 30 μm stark ist. Die zweite Phase einer deutlich verstärkten Ausheilung setzt ein. Sie erstreckt sich über etwa 70 Stunden. Hier heilt der Faserkern unter Sauerstoffeinfluss aus. Die Ausheilgeschwindigkeit hängt von der Diffusionsgeschwindigkeit des Sauerstoffs im Cladding ab, die von der im PS-Kern deutlich übertroffen wird. Die PMMA-Diffusionsgeschwindigkeit wird in der Literatur mit einem Wert von $D_{O_2}(\mathrm{PMMA}) \approx 3 - 4 \cdot 10^{-8} \mathrm{cm^2 s^{-1}}$ für Raumtemperatur und 1013 hPa Sauerstoffdruck in der Umgebungsatmosphäre angegeben. Dieser Wert ist um eine Größenordnung kleiner als bei Polystyrol ($D_{O_2}(\mathrm{PS}) = 1{,}1 \cdot 10^{-7} \mathrm{cm^2 s^{-1}}$). Hauptsächlich aufgrund geometrischer Umstände verlangsamt sich der Schadensrückgang während dieser Hauptausheilphase: die (negative) Steigung der Ausheilung sinkt im Laufe dieser Phase um ca. 20 % in 40 Stunden; die runde Faser heilt durch den von außen kommenden Sauerstoff zu den großen außen liegenden Volumina relativ schneller aus, die effektive Diffusionsoberfläche des noch nicht ausgeheilten Zylinders wird dabei ständig kleiner.

Im sich an diese Phase der schnellen Ausheilung anschließenden Zeitraum zeigt sich bis zum Ende der Beobachtung keine optische Veränderung der Faser, das Niveau des strahleninduzierten Schadens ist auf den Permanentschaden abgesunken. Das Spektrum dieses Schadens (Abb. 6.1 rechts) ist das gleiche wie es bei einer Bestrahlung ohne den Einfluss von O_2-Mangel zu beobachten ist (vgl. Abschnitt 6.2.4).

Fazit

Die Dosis, bei der die PS-Faser mit PMMA-Cladding BCF-98 mit allen unbekannten Zusätzen durch Bestrahlung eine Sauerstofffreiheit erreicht, liegt für die verwendeten Röntgendosisleistungen bei ca. 3 kGy für eine Probe mit 2 mm Durchmesser. Ein kleinerer Durchmesser lässt diesen Wert zumindest bei geringen Dosisleistungen weiter ansteigen, da die Diffusionseigenschaften verbessert sind.

Die weiterhin durchgeführten Untersuchungen wurden mit geringeren Dosisleistungen und kleineren Gesamtdosen durchgeführt. Obwohl Szintillatoren eine höhere Empfindlichkeit gegen Strahlung haben können[4], wird davon ausgegangen, dass während der im Weiteren behandelten Bestrahlungen in Luft stets kein Sauerstoffmangel auftrat, der die Bestrahlungen beeinflussen könnte. Die einzige Ausnahme dazu bildet die in Abschnitt 6.6 behandelte Bestrahlung der PMMA-Faser FL-51, in der es durch die sehr begrenzte O_2-Diffusion in PMMA auch bei geringen Dosisleistungen zu Sauerstoffverbrauchseffekten kommen kann[5].

6.2.2 Zeitliche Entwicklung und Spektren der Absorption

Die Faser BCF-98 zeigt generell auch mit gelöstem Sauerstoff in der Faser während der Bestrahlung mit Röntgenquanten eine Zunahme der optischen Absorption, die zu kurzen Wellenlängen hin ansteigt. Die zeitliche Entwicklung ist beispielhaft für die Wellenlängen von 400 nm, 420 nm, 440 nm und 500 nm in Abb. 6.3 links dargestellt.

Eine 88 cm lange Faser wurde 27,5 Stunden lang mit 33 Gy/h bestrahlt. Während der Bestrahlung findet eine Zunahme der Absorption statt, die sich nach einem steileren Anstieg in einer mehrstündigen Einlaufzeit linear entwickelt. Die lineare Steigung bleibt dabei auf geringerem Niveau als bei Bestrahlungen mit Sauerstoffmangel.

Direkt nach Abschalten der Bestrahlung heilt ein kleiner Teil der strahleninduzierten Absorption innerhalb kurzer Zeit aus, der größte Teil bleibt stabil über den Rest des Beobachtungszeitraums.

Das unterschiedliche zeitliche Verhalten lässt eine Trennung der Absorptionsbanden des kurzlebigen ausheilenden Schadens und des Permanentschadens zu. Die Absorptionsspektren der beiden Zentren für diese Faser sind in Abb. 6.3 rechts für dieselbe Bestrahlung mit 900 Gy dargestellt. Die stabilen Absorptionszentren verursachen eine zu kurzen Wellenlängen hin stark ansteigende Absorption, deren Maximum weit unter 380 nm liegt. Ein solches Verhalten der PS-Matrix ist aus vielen Experimenten mit reinem Polystyrol bekannt [BP91a, WSC93]. Das Absorptionsmaximum kann in dieser Messung aufgrund der Länge der untersuchten Faser nicht dargestellt werden, da die transmittierte Lichtintensität für kleine Wellenlängen zu gering ist (vgl. Abschnitt 5.1).

Das diesem Permanentschaden überlagerte kurzlebige Absorptionsband ist bisher

---

[4] In früheren Experimenten mit der Faser BCF-12 wurde z. B. ein ungewöhnlich hoher Sauerstoffverbrauch festgestellt, der bei Beobachtungen in Inertgasatmosphäre schon bei ca. 300 Gy zu einem O_2-Mangel führte [Bus99].

[5] In diesen Messungen wurde die geringe Diffusion von Sauerstoff in PMMA ausgenutzt, um die Dosis des vollständigen O_2-Verbrauchs zu bestimmen.

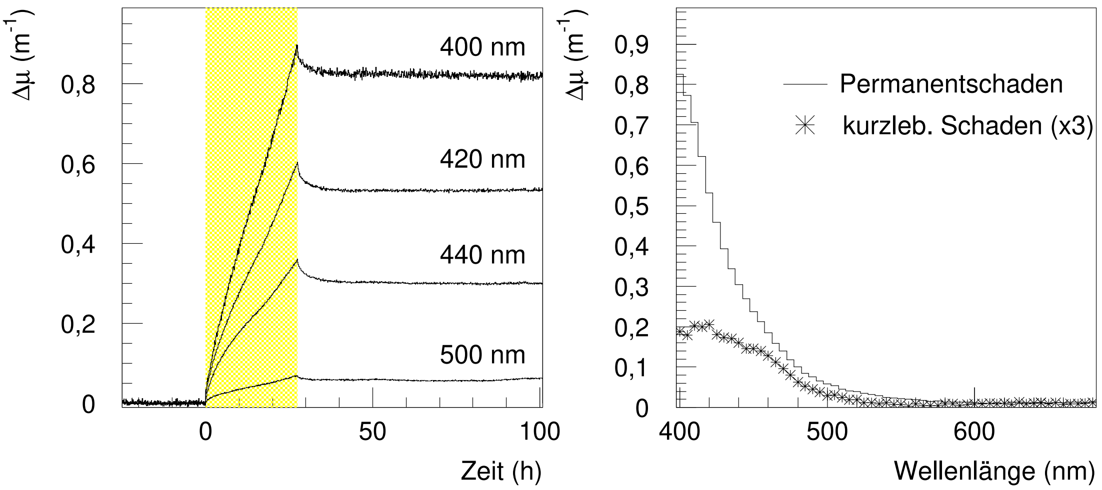

Abbildung 6.3: *Links: Absorptionsentwicklung in BCF-98 bei vier Wellenlängen. $D = 900$ Gy, $\dot{D} = 33$ Gy/h. Der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben. Rechts: Spektren des kurzlebigen Schadens (3-fach verstärkt) und des Permanentschadens derselben Bestrahlung.*

unbekannt. Es ist von geringer Intensität, aber großer Breite und besitzt ein Maximum bei 420 nm. Die spektrale Verteilung (s. auch Abb. 6.4) legt die Annahme nahe, dass es sich nicht um ein einziges Absorptionszentrum, sondern um mehrere dicht benachbarte handelt, die sich durch die schwache Wellenlängenauflösung des Experiments überlappen. Sie werden jedoch alle von einem Molekül hervorgerufen, denn gemein ist ihnen die zeitliche Entwicklung in Entstehung und Ausheilung. Bereits 5 Stunden nach Ende der Bestrahlung ist dieser Anteil komplett verschwunden und dementsprechend allein in Online-Experimenten beobachtbar. Eine spektrale Analyse der Bestrahlungsphasen zeigt, dass sich diese Absorptionszentren sofort bei Bestrahlungsbeginn ausbilden und dann über einen konkurrierenden Rekombinationsprozess sättigen. Die Kinetik dieser Entwicklung kann beschrieben werden (vgl. Abschnitt 6.2.3).

Eine Hervorhebung des kurzlebigen Anteils kann über sehr kurzzeitige Bestrahlungen erreicht werden, in denen sich der Permanentschaden noch nicht stark entwickelt. Abb. 6.4 zeigt ein Experiment dieser Art: Hier wird für drei aufeinander folgende Bestrahlungen von 2×3 und 1×1 Stunde besonders die kurzlebige Absorption in ihrer spektralen und zeitlichen Entwicklung dargestellt. Nach jeder Bestrahlung wurde der Ausheilvorgang über einen Zeitraum von ca. 33 Stunden beobachtet.

Der Zeitverlauf am Beispiel von 425 nm zeigt einen sich wenig abflachenden Schadensanstieg bei Bestrahlung. Aufgrund der kurzen Bestrahlungszeiten kann eine Veränderung des Anstiegs während der Bestrahlung nicht sicher bestimmt werden. Die Entwicklung der kurzlebigen Absorption zeigt zwar eine Sättigungserscheinung, ein linearer Anstieg des Schadens ist jedoch noch nicht deutlich zu beobachten. Die Trennung der beiden Schadensanteile in Abb. 6.4 rechts wurde nach der zweiten

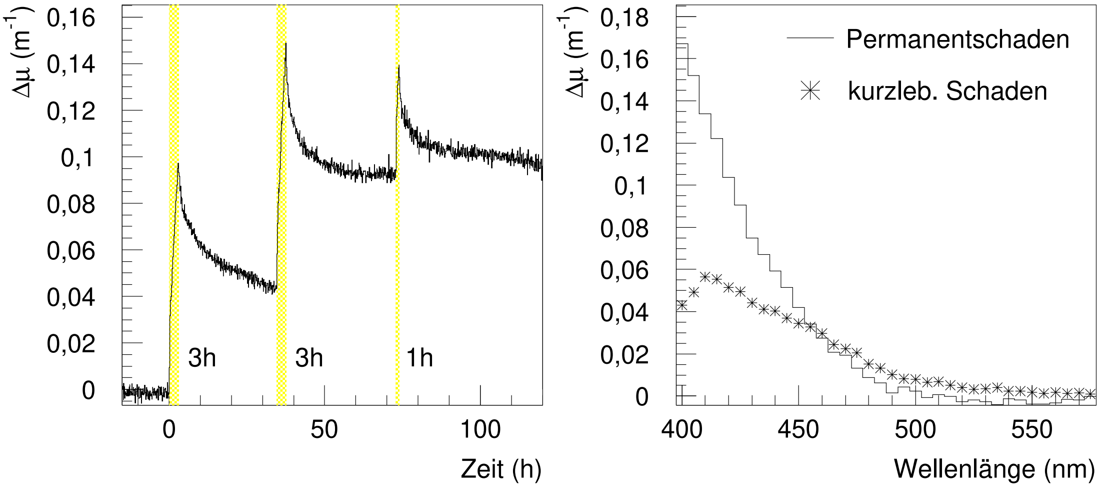

Abbildung 6.4: *Links: Absorptionsentwicklung in BCF-98 bei* $\lambda = 425\,nm$. $D_{ges} = 230$ *Gy,* $\dot{D} = 33$ *Gy/h. Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben. Rechts: Spektren des kurzlebigen und des Permanentschadens nach der zweiten Bestrahlung* ($D = 200$ *Gy).*

Bestrahlung vorgenommen, nach der eine vollständige Ausheilung des kurzlebigen Schadens festgestellt wurde. In der dritten, einstündigen Bestrahlung entwickeln sich nicht ausreichend viele kurzlebige Absorptionszentren.

Die annähernd gleiche Größe des ausheilenden Schadens für die Bestrahlung mit 200 Gy (Abb. 6.4 rechts) und 900 Gy (Abb. 6.3 rechts) zeigt, dass nach den drei Stunden der zweiten kurzen Bestrahlung die Grenze zur Sättigung dieses 420 nm-Peaks bereits fast erreicht ist. Mit der Einschränkung, dass der kurzlebige Anteil der vorhergehenden Bestrahlung noch nicht vollständig ausgeheilt ist, ergibt sich so die Bestrahlungszeit von ca. 4–5 Stunden für eine Dosisleistung von 33 Gy/h, in der der Schaden eine Sättigung erfährt. Mit der Beschreibung des Schadens durch eine der in Kapitel 4 vorgestellten Kinetiken kann eine Erweiterung auf andere Dosisleistungsbereiche erfolgen.

6.2.3 Beschreibung des kurzlebigen Schadens

Zur Trennung der zeitlichen Entwicklung von Permanentschaden und kurzlebigem Anteil wurde angenommen, dass sich ein permanenter Schaden linear mit der applizierten Dosis entwickelt (vgl. dazu Abschnitt 6.2.4). Die kurzlebige Absorption steigt entsprechend einer konzentrationsabhängigen Rückreaktion zu Anfang der Bestrahlung stark an, um dann in eine Sättigung zu laufen. Nach der Trennung der Schäden kann die zeitliche Entwicklung der kurzlebigen Absorption mit Hilfe eines kinetischen Ansatzes zweiter Ordnung und damit als bimolekulare Reaktion beschrieben werden.

Abb. 6.5 zeigt eine Anpassung an die Daten für die Wellenlänge von 420 nm, dem

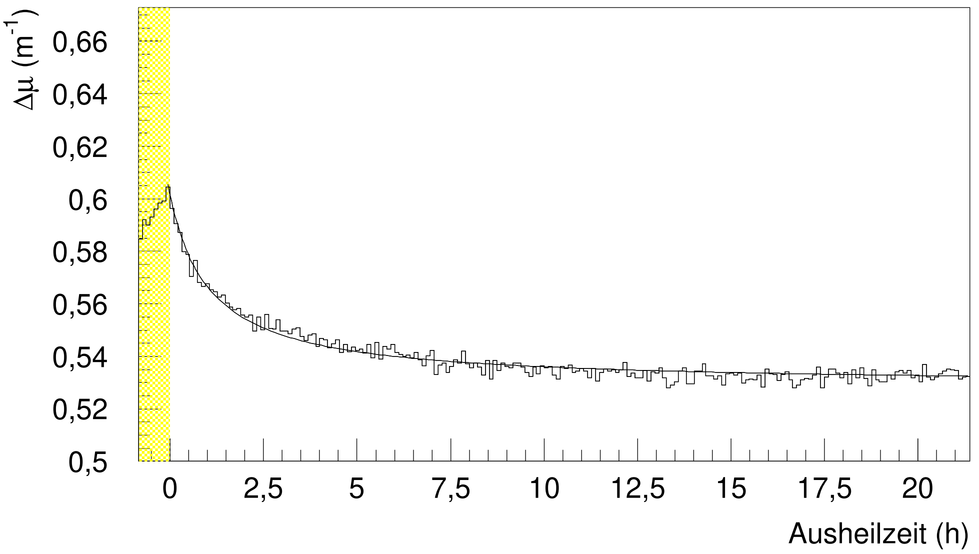

Abbildung 6.5: *Anpassung einer Funktion zweiter Ordnung nach Gl. 4.20 an die Ausheilung einer PS-Faser nach Bestrahlung mit 900 Gy bei* $\lambda = 420\,\mathrm{nm}$. *Es ergibt sich ein Ausheilparameter* $\tau = 1{,}1\,\mathrm{h}$ *(nach Gl. 4.20, S. 28).*

Maximum der kurzlebigen Absorption für die Ausheilung einer Bestrahlung mit 900 Gy. Die Daten lassen sich mit dem Ansatz zweiter Ordnung nach Gl. 4.20 auf S. 28 gut beschreiben, auf einen exponentiellen Zerfall (Ansatz erster Ordnung) gibt es keinen Hinweis.

Mit den aus den Ausheilungsdaten erhaltenen Parametern lassen sich Funktionen auch in die Produktionsphase der Absorption während der Bestrahlung einzeichnen. Abb. 6.6 zeigt am Beispiel der Bestrahlung mit 900 Gy, dass die Daten aus Anpassungen an die Bestrahlungsphase und die Ausheilungsphase gut übereinstimmen und eine schlüssige Beschreibung der zeitlichen Entwicklung des Strahlenschadens zulassen. Ein im Verhältnis zu dieser Beschreibung zu schnelles Ansteigen der Absorption direkt zu Beginn der Bestrahlung ist nicht erklärbar.

Die Beobachtung des Schadens trägt zum Verständnis der Prozesse im Kunststoff bei. Sein Absorptionsband liegt im spektralen Emissionsbereich der blau emittierenden Szintillatoren und kann deren Leistung beeinträchtigen. Jedoch ist gerade bei einem Strahlungsuntergrund mit sehr geringen Dosisleistungen, wie er in Detektoren anzutreffen ist, die Ausprägung der Absorption und damit ihr Einfluss auf Hochenergieexperimente gering. Die sich schnell entwickelnde und wieder verschwindende Absorption kann aber durchaus im Bereich der Betriebsfrequenzen von Hochenergiedetektoren liegen. So kommt es z. B. im laufenden HERA-Speicherring am DESY typischerweise alle 8–9 Stunden zur Betriebspause, wenn der Elektronen-Strahl neu eingebracht wird.

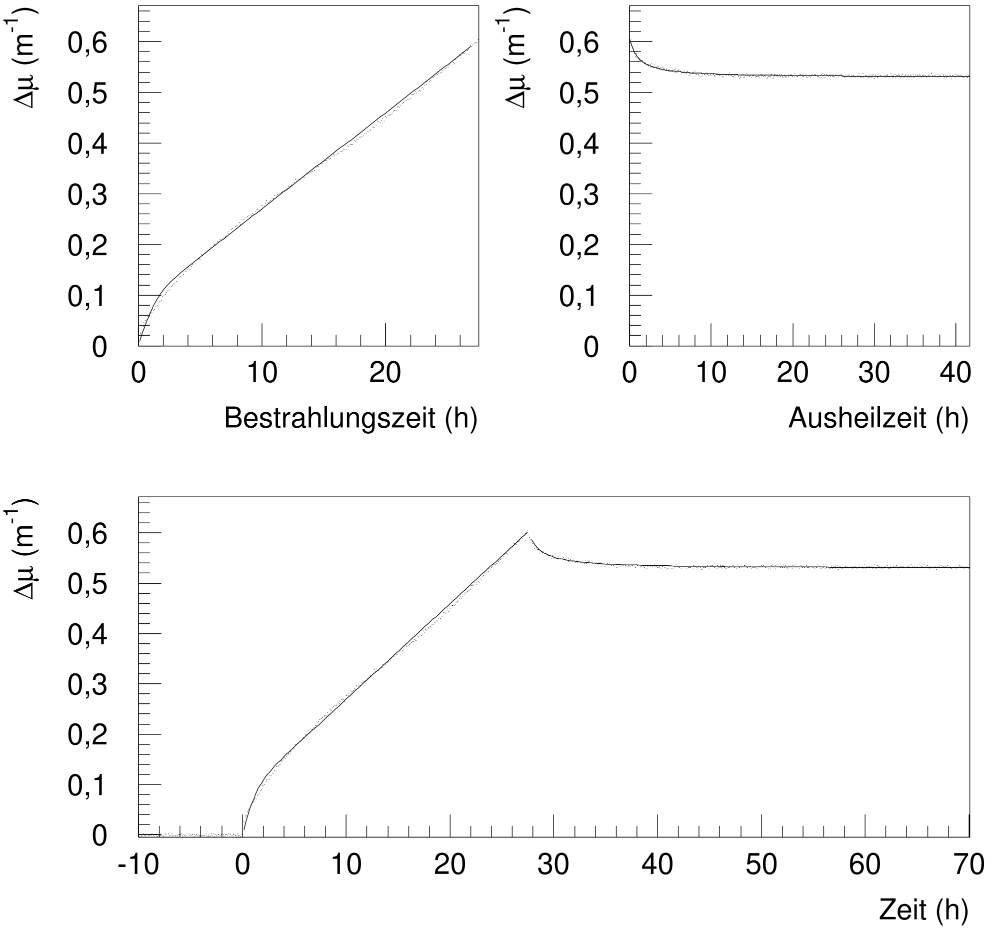

Abbildung 6.6: *Anpassung einer Funktion zweiter Ordnung an die Bestrahlung (links oben) und Ausheilung (rechts oben) einer PS-Faser bei Bestrahlung mit 900 Gy bei $\lambda = 420\,\mathrm{nm}$. Eine schlüssige Beschreibung der Gesamtschadensentwicklung ist mit einem einzigen Parametersatz möglich (unten). Nach Gl. 4.20, S. 28 ergibt sich ein Ausheilparameter $\tau = 1{,}1$ h.*

6.2.4 Entwicklung des permanenten Absorptionsschadens

Eine bedeutendere Rolle für den Detektorbetrieb spielen die sich unabhängig von der Dosisleistung der Untergrundstrahlung im Material entwickelnden permanenten Absorptionsschäden. Sie zeigen keine Ausheilungserscheinungen und summieren sich so im laufenden Betrieb eines Detektors immer weiter auf. Die Entwicklung dieses Schadens kann für BCF-98 ebenfalls beschrieben werden.

Aus den vorhandenen Bestrahlungsdaten der Faser BCF-98 wurden nach vollständiger Ausheilung des nicht permanenten Schadens während des Beobachtungszeitraums die Permanentschäden bestimmt. Zudem können sie zusätzlich aus der Steigung des Schadensanstiegs in späteren Stadien der Bestrahlung ermittelt werden, wenn ein linearer Anstieg vorliegt und die sich zuerst besonders stark entwickelnden

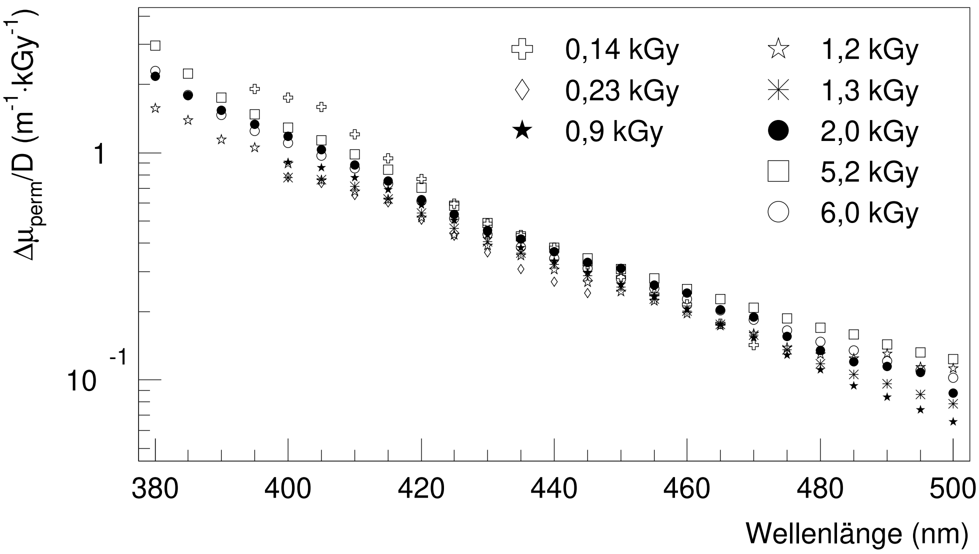

Abbildung 6.7: *Optische Permanentschadensentwicklung pro Dosis für an der Faser BCF-98 durchgeführte Bestrahlungen von 0,14 bis 6 kGy. Zu kleinen Wellenlängen und zu kleinen Dosen steigt die Unsicherheit der Werte an.*

ausheilenden Absorptionszentren gesättigt sind (vgl. Abschnitt 6.2.1).

Die Schadensentwicklung kann für einen Dosisbereich bis zu 2 kGy für Messungen, in denen die Faser nie sauerstofffrei war, angegeben werden. Zwei weitere Messungen unter Luftatmosphäre mit Dosen von 5,16 und 6,0 kGy, bei denen während der Bestrahlung ein O_2-Mangel eintrat, können hinzugenommen werden. In ihnen bilden sich dieselben permanenten Absorptionszentren aus und die Ausheilung auf den Permanentschaden ist offensichtlich nur durch die Diffusionsgeschwindigkeit des Sauerstoffs in der Faser beeinflusst, nicht durch den Ablauf anderer chemischer Reaktionen. Eine Abhängigkeit des permanenten optischen Schadens von der Tatsache, ob während der gesamten Bestrahlung Sauerstoff im Polymer gelöst war, wurde nicht gefunden. Rückreaktionen der Radikale, die nicht mit Sauerstoff ablaufen, wie z. B. die Rekombination zweier Radikalstellen, scheinen in den untersuchten PS-Proben sehr stark unterdrückt zu sein. Zumindest in den kurzen Zeiten, die der Sauerstoff für eine Diffusion in das Polymer benötigt, finden diese nicht dominant statt. Mit dem Eindringen von Sauerstoff öffnen sich neue Reaktionskanäle, die einen schnellen Abbau der Absorption auf dasselbe Niveau wie in der dauerhaft mit Sauerstoff versorgten Faser zulassen. Dies spricht für eine sehr geringe Beweglichkeit und dabei eine relativ geringe Dichte der radikalischen Stellen im Polymer, die eine chemische Reaktion erst dann wahrscheinlich macht, wenn ein mobiles O_2-Molekül dicht an die Radikalstelle diffundiert.

Eine Entwicklung der Permanentschadensgröße pro applizierter Dosis für Bestrahlungen von BCF-98 mit acht verschiedenen Gesamtdosen ist in Abb. 6.7 dargestellt. Die Fehler sind der Übersicht halber nicht aufgetragen, sie wachsen aber zu kleinen

Wellenlängen hin sowie besonders zu kleinen Dosen. Daten, die bei zu kleiner Gesamttransmission aufgenommen wurden, wurden ebenso wenig verwendet wie solche, in denen sich die Transmission nur in der Größenordnung der Unsicherheit änderte. Eine Streuung ergibt sich durch die verschiedenen Experimentierbedingungen für die einzelnen Fasern. Die Länge der für die Darstellung verwendeten Fasern variierte, der Durchmesser ebenfalls. Im für alle Bestrahlungen zuverlässig beobachteten Bereich, in welchem PS eine Schädigung aufweist (von 400 bis 460 nm), kann eine lineare Entwicklung des Permanentschadens mit der applizierten Dosis verzeichnet werden. Diese ist unabhängig von der Dosisleistung, die für die abgebildeten Bestrahlungen im Bereich von 32 bis 128 Gy/h lag.

Die Schadensentwicklung liegt für 425 nm bei $\Delta\mu_{\text{perm}}/\text{D} = (0{,}55\pm0{,}11)\,\text{m}^{-1}\text{kGy}^{-1}$. Sie ist auch in Abb. 6.10 im folgenden Abschnitt ersichtlich. Weitere Werte der direkt gemessenen Permanentschäden sowie der linearen Anpassungen für verschiedene Wellenlängen sind tabellarisch in Anhang B.3 und B.4 dargestellt.

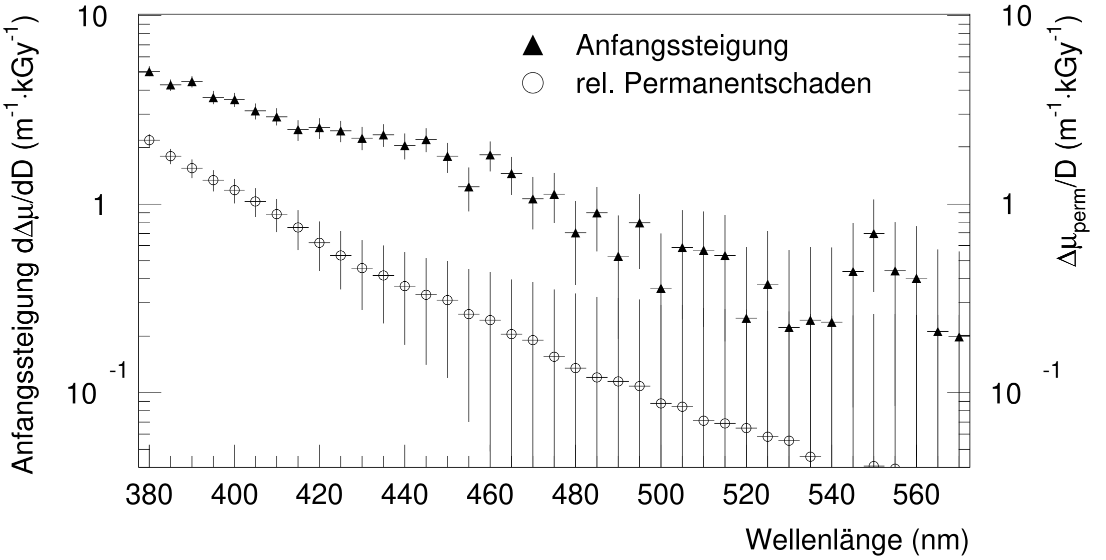

Abbildung 6.8: *Vergleich des optischen Schadensanstiegs $d\Delta\mu/dD$ in der ersten Bestrahlungsphase mit dem nach Ausheilung verbleibenden relativen Permanentschaden $\Delta\mu_{perm}/D$.*

Im Vergleich mit der Anfangssteigung des optischen Strahlenschadens in BCF-98 (dargestellt in Abb. 6.2) ergibt sich pro Dosis ein deutlich geringerer permanenter Schaden. In der ersten Bestrahlungsphase tritt das Spektrum der primären Schädigung auf, während noch keine Rückreaktionen zu verzeichnen sind. Ein linear mit der Dosis ansteigender Schaden ist die Folge, der von der Dosisleistung unabhängig ist. Der Vergleich dieses Anfangsanstiegs mit dem in der Faser entstehenden relativen Permanentschaden ist in Abb. 6.8 dargestellt.

Für Wellenlängen bis zu 420 nm ruft die Produktion der primären Absorptionszentren im Vergleich zum verbleibenden Permanentschaden einen doppelt bis dreimal so großen Absorptionsschaden hervor. Bei größeren Wellenlängen bis zu 540 nm liegt das Verhältnis sogar bei 4–7.

6.2.5 Vergleich mit unabhängigen Messungen

Ein hier beobachteter linearer Schadensanstieg in der permanenten optischen Absorption sollte nur für nicht zu große Dosen stattfinden können; für sehr große Dosen erwartet man eine Sättigung des optischen Schadens. Dies ist zum einen darin begründet, dass bei vollständiger Zerstörung des Polymers keine weitere Absorption eintreten kann, auch ist eine so hohe Dichte an Schädigungsstellen vorstellbar, dass jede weitere Zerstörung eines Moleküls sofort eine Rückreaktion nach sich zieht. Eine solche Sättigung konnte bei Dosen bis 6 kGy nicht beobachtet werden. Zum Vergleich werden durch andere Experimente erlangte Daten mit z. T. erheblich höheren Bestrahlungsdosen herangezogen.

Ein Vergleich des gemessenen permanenten optischen Strahlenschadens in BCF-98 erfolgt mit Daten von Polystyrolplatten, die von den Experimentatoren Bross und Pla-Dalmau ([BP91a]) stammen. Transmissionsdaten von permanenten Strahlenschäden aus [BP91a] in reinem selbst polymerisierten PS wurden ausgewertet. Sie liegen für Bestrahlungsdosen von 10, 50, 100, 500 und 1000 kGy vor. Die Bestrahlungen von 10 mm dicken PS-Scheiben wurden unter Stickstoffatmosphäre an einer ^{60}Co-Quelle mit ca. 10 kGy/h Dosisleistung durchgeführt. Eine Messung des Permanentschadens wurde nach zwei Wochen Ausheilung unter Sauerstoffatmosphäre

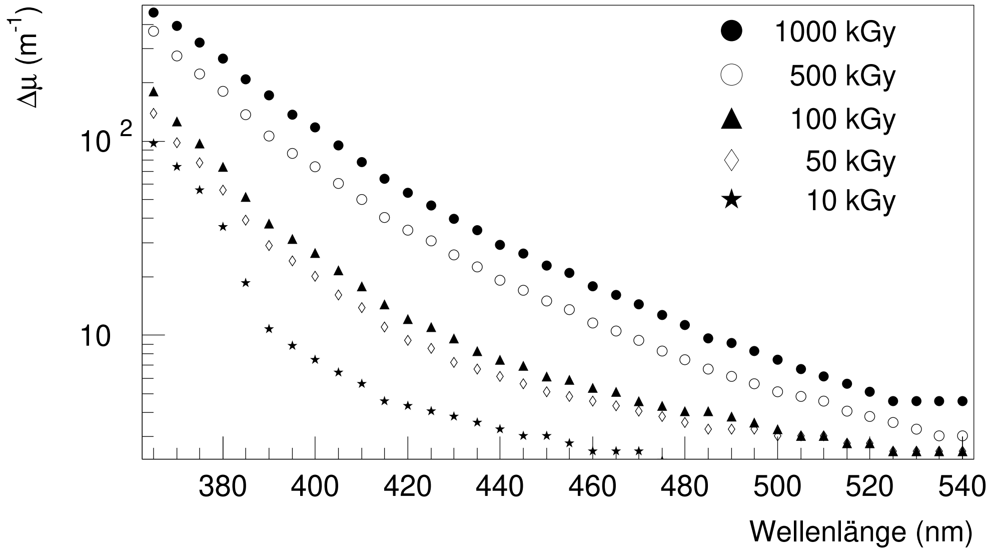

Abbildung 6.9: *Aus den Transmissionsdaten aus [BP91a] berechneter permanenter Strahlenschaden in Polystyrol für die angegebenen ^{60}Co-Dosen nach zwei Wochen Ausheilung unter O$_2$-Atmosphäre.*

vorgenommen. Zum Verfahren der Probenherstellung sowie den genauen experimentellen Bedingungen sei auf die Quelle verwiesen.

Es wurde ein mit der applizierten Dosis ansteigender optischer Strahlenschaden auch für hohe Dosen gemessen, die gemessenen Werte sind in Abb. 6.9 dargestellt. Um eine funktionale Anpassung der Abhängigkeit der Permanentschäden von der Dosis zu erkennen, sind zu wenig Werte vorhanden, eine Konsistenz der Schadensentwicklung über das gesamte Spektrum besteht nicht.

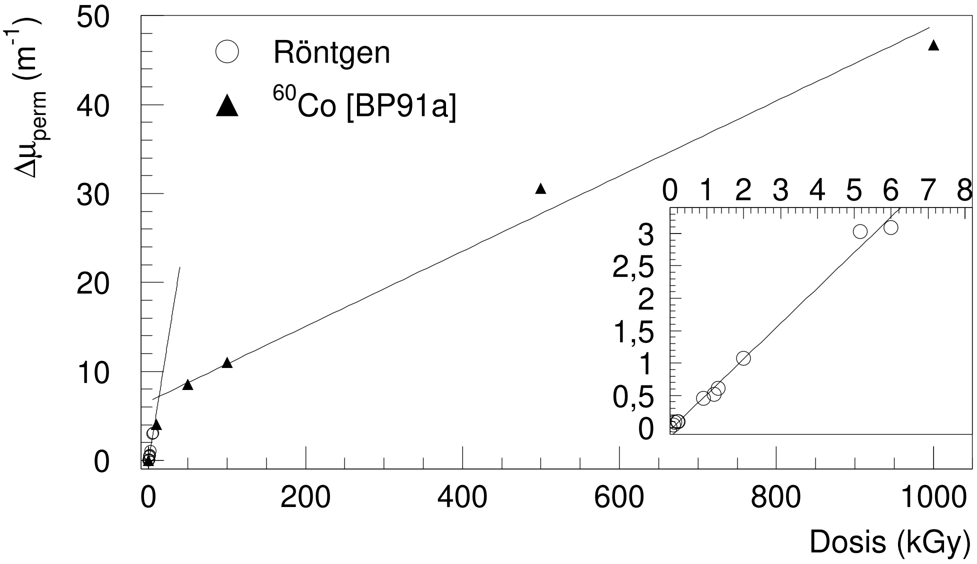

Abbildung 6.10: *Vergleich der Permanentschäden von PS aus [BP91a] und eigener Daten für BCF-98 für 425 nm. Lineare Anpassungsfunktionen (siehe Text) verdeutlichen den um einen Faktor 13 geringeren Anstieg bei hohen Dosen. Der Bereich kleiner Dosen ist zusätzlich vergrößert dargestellt.*

Nimmt man vereinfachend eine lineare Abhängigkeit der optischen Absorption $\Delta\mu$ von der Dosis an, kann sie mit der Entwicklung des Permanentschadens bei geringeren Dosen verglichen werden. Abb. 6.10 stellt dies für 425 nm dar. Zur Verdeutlichung sind an die Daten angepasste lineare Funktionen mit abgebildet. Für kleine Dosen ist das die Funktion:

$$\Delta\mu(\mathrm{D}) = -0,032\,\mathrm{m}^{-1} + 0,548\,\mathrm{m}^{-1} \cdot \mathrm{D/kGy} \quad ,$$

für Dosen über 12 kGy lautet die Abhängigkeit:

$$\Delta\mu(\mathrm{D}) = 6,170\,\mathrm{m}^{-1} + 0,042\,\mathrm{m}^{-1} \cdot \mathrm{D/kGy} \quad .$$

Die Funktionen schneiden sich bei 12,2 kGy für die dargestellte Wellenlänge von 425 nm; für Wellenlängen bis 470 nm streut der Schnittpunkt der linearen Anpassungen zwischen 10,5 und 16,5 kGy. Der Wert für 10 kGy von Bross et al. zeigt deutlich

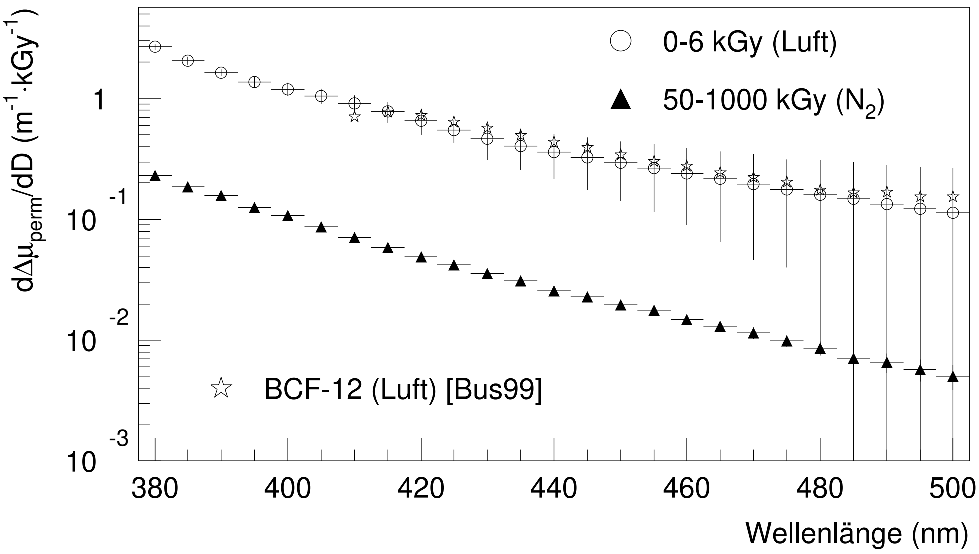

Abbildung 6.11: *Steigung des Permanentschadens pro Dosis aus den linearen Anpassungen an die hier durchgeführten Röntgenbestrahlungen (Kreise) und die aus [BP91a] stammenden* ^{60}*Co-Bestrahlungen (Dreiecke). Die relativen Schäden der beiden Messreihen unterscheiden sich von 380–455 nm um Faktor 10,5–15 (vgl. Abb. 6.12). Die Daten für BCF-98 stimmen sehr gut mit dem Permanentschadensanstieg in BCF-12 bei Bestrahlung mit 42 Gy/h aus [Bus99] überein (Sterne).*

bessere Übereinstimmung mit dem niederdosierten Verlauf als mit den restlichen Hochdosisbestrahlungen.

Der Anstieg des Strahlenschadens mit der applizierten Dosis unterscheidet sich in den Dosisbereichen unterhalb und oberhalb von 10 kGy um den Faktor 13 für die Wellenlänge von 425 nm. Die Spektren der relativen Schäden pro Dosis für beide Messreihen sind in Abb. 6.11 aufgetragen, die Quotienten der Steigungen für Wellenlängen bis 500 nm sind in Abb. 6.12 abzulesen. In Abb. 6.11 sind zum Vergleich zusätzlich die relativen Permanentschäden in BCF-12 (Bicron) abgebildet. Sie wurden in Röntgenbestrahlungen von BCF-12 in Luft ermittelt [Bus99]. Sie stimmen sehr gut mit den Schäden in BCF-98 desselben Herstellers überein.

Im Vergleich zu den Hochdosisbestrahlungen sind für alle Wellenlängen bei niedrigen Gesamtdosen um Faktor 10–15 größere relative Permanentschäden zu beobachten als bei hohen Dosen (Abb. 6.12) . Bei größeren Wellenlängen steigt die Unsicherheit, da der beobachtete Schaden bei den Röntgenbestrahlungen hier sehr gering ist.

Die Vergleichbarkeit der in verschiedenen Experimenten gewonnenen Daten ist mit Unsicherheiten behaftet. Prinzipiell sind für die starken Differenzen in der optischen Schadensentwicklung verschiedene Gründe anführbar:

a) **Verschiedenheit der bestrahlten Materialien:** Ein möglicher Einfluss der Reinheit und Polymerisierungsart sowie der geometrischen Form der vergliche-

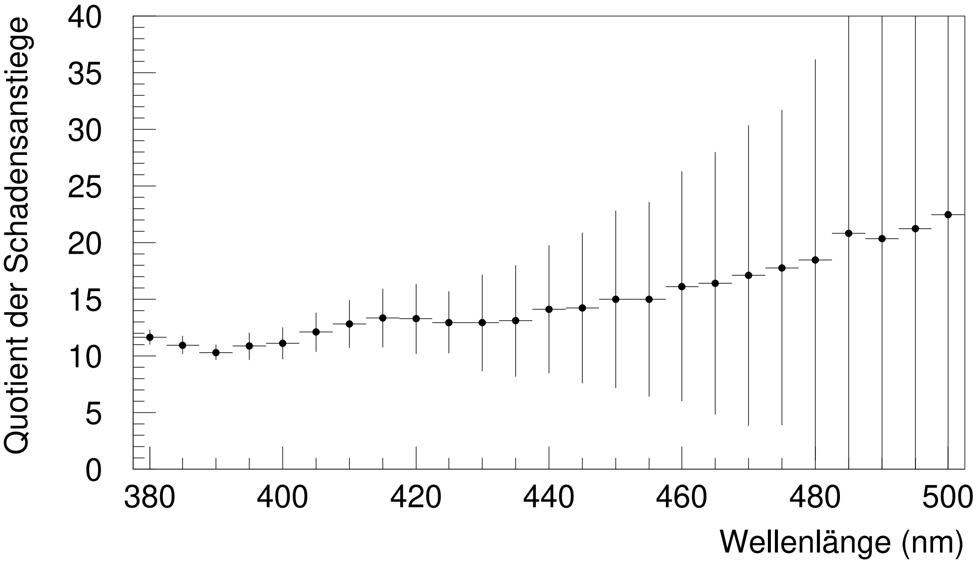

Abbildung 6.12: *Quotient der Steigungen des permanenten Strahlenschadens mit der Dosis* $d\Delta\mu_{perm}/dD$ *für Bestrahlungen unter 10 kGy und oberhalb (eigene Daten und Daten aus [BP91a]). Die Werte der Steigungen für beide Messreihen sind in Abb. 6.11 ersichtlich.*

nen PS-Proben auf den permanenten Strahlenschaden ist nicht von der Hand zu weisen. Allerdings zeigt auch die Probe mit der kleinsten Bestrahlungsdosis (10 kGy) von Bross et al. einen im Verhältnis zu den mit größerer Dosis bestrahlten Proben sehr viel höheren relativen Permanentschaden. Er liegt mit einem Wert von $\Delta\mu_{\text{perm}}/\text{D} = 0{,}41\,\text{m}^{-1}\,\text{kGy}^{-1}$ bei 425 nm in vergleichbarer Größe mit den eigenen Daten für die BCF-98-Faser (s. Abb. 6.10). Erst bei den größeren Dosen fällt die Steigung des Schadens ab.

b) **Einfluss der Bestrahlungsatmosphäre auf den Permanentschaden:** Die Röntgenbestrahlungen wurden in Luft durchgeführt, die zum Vergleich herangezogenen ^{60}Co-Bestrahlungen aus [BP91a] in Stickstoff. Ein von denselben Autoren festgesteller Einfluss des Sauerstoffgehalts in der Bestrahlungsatmosphäre auf den Endschaden [BP91b] ist somit eine weitere Möglichkeit, warum die relativen optischen Schäden differieren. In [BP91b] wurden PS-Proben mit einer Dosis von 100 kGy unter verschiedenen Atmosphären bestrahlt; anschließend heilten sie unter Sauerstoff aus. Dabei war der Permanentschaden in PS um so größer, je mehr Sauerstoff in der Bestrahlungsatmosphäre zur Verfügung stand.

Eine Erklärung der Effekte könnte somit lauten, dass bei Bestrahlung unter Sauerstoffabschluss zwar dieselben Radikale entstehen wie mit O_2, diese aber ohne Sauerstoff in anderen chemischen Reaktionen abgebaut werden. Bei einer späteren weiteren Ausheilung unter Sauerstoff können dann bei gleicher Dosis nur kleinere Endschäden entstehen, da die primär erzeugten Radikale bereits auf anderen Wegen Reaktionen eingegangen sind, die optisch nicht oder nur schwach absorbieren.

Zur Bewertung der Abhängigkeit von der Bestrahlungsatmosphäre kann hier eine Röntgenbestrahlung von BCF-98 in Inertgas angeführt werden: Mit einer Dosisleistung von 130 Gy/h wurde eine Faser bis zu einer Gesamtdosis von 3,7 kGy bestrahlt. Die Bestrahlung ist in Abb. 6.13 dargestellt. Die Beobachtung des zeitlichen Verlaufs war für ca. 17 Stunden unterbrochen. Während der Bestrahlung wurde die Faser zuerst in Stickstoff, anschließend in Argon gehalten[6]. Der in Abb. 6.13 rechts aufgetragene relative Permanentschaden ist wenig kleiner als der zum Vergleich eingezeichnete relative Schaden einer unter Luftatmosphäre bestrahlten Probe. Das Spektrum der Permanentschäden ist dasselbe. Eine Reduktion des Permanentschadens um eine Größenordnung wie im Vergleich der Röntgendaten mit den [BP91a]-Daten wird nicht gesehen. Diese Aussage kann hier jedoch nur für kleine Dosen und mit der Einschränkung gemacht werden, dass evtl. zu Bestrahlungsbeginn noch Reste von Sauerstoff in der Faser gelöst waren. Unterschiede zu den Daten aus [BP91a] treten zudem erst bei $D \geq 10$ kGy auf.

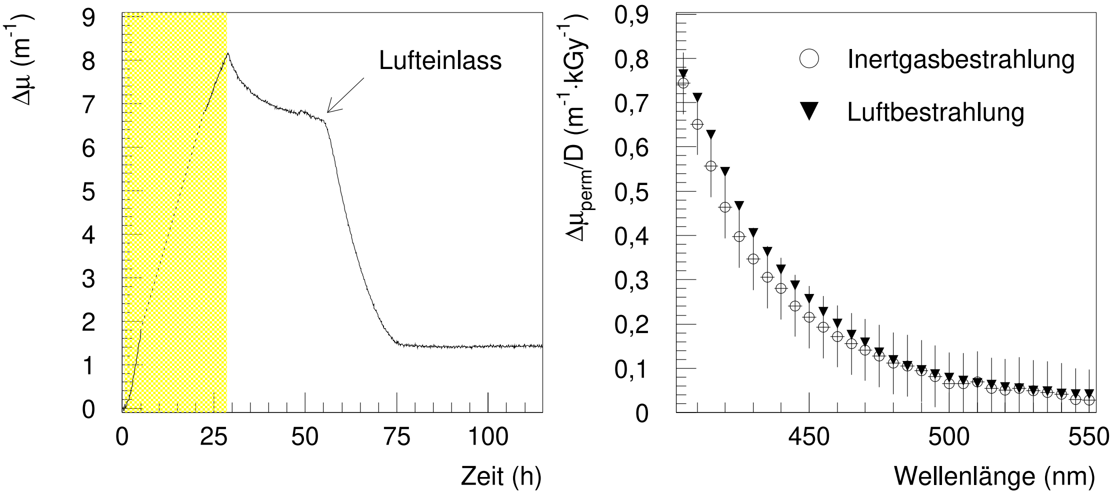

Abbildung 6.13: *Bestrahlung von BCF-98 in Inertgas mit Lufteinleitung während der Ausheilung.* $D = 3{,}7\,kGy$, $\dot{D} = 130\,Gy/h$. *Links: Zeitverlauf der Schädigung bei* $\lambda = 425\,nm$ *(gepunktete Linie: Unterbrechung der Beobachtung). Der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben. Rechts: Spektrum des Permanentschadens pro Dosis* $\Delta\mu_{perm}/D$. *Zum Vergleich ist der relative Permanentschaden einer 1,3 kGy-Bestrahlung in Luftatmosphäre eingezeichnet.*

Falls Sauerstoff in der Bestrahlungsatmospäre negativen Einfluss auf den entstehenden Permanentschaden hat, so ist für einen Kalorimetereinsatz stets mit hohen Schäden zu rechnen, da durch die geringen Dosisleistungen im Detektorbetrieb immer Sauerstoff in der Faser gelöst sein wird.

---

[6] Die Art des Inertgases hat nach [BP91b] keinen Einfluss auf den Permanentschaden.

c) **Abnahme der Produktionsrate der Absorptionszentren:** Mit zunehmender Bestrahlung könnte die Produktion derselben Absorptionszentren, die bei geringen Dosen entstehen, fortlaufen, jedoch mit geringerer Ausbeute.

   Die bereits am Ende des vorhergehenden Abschnitts erwähnten Sättigungserscheinungen durch eine so hohe Radikaldichte, dass Rückreaktionen auch ohne Sauerstoffeinfluss sehr wahrscheinlich werden, begrenzt die Produktion von zusätzlichen Absorptionszentren. Chemische Reaktionen zu nicht absorbierenden Molekülen könnten den optischen Schaden begrenzen.

   Eine Erklärung für die unterschiedlichen Schadenszunahmen in den verschiedenen Dosisbereichen ist somit, dass zwar nur eine Sorte von permanenten Absorptionszentren gebildet wird, die Produktionsrate jedoch bei kleinen Dosen deutlich größer ist und bei hoch dosierten Bestrahlungen in Sättigung läuft.

d) **Bildung von unterschiedlichen Absorptionszentren bei verschiedenen Dosen:** Das Schädigungsspektrum der ^{60}Co-Bestrahlungen (s. Abb. 6.9, S. 57) ändert sich zu großen Dosen hin leicht, wird aber vorwiegend breiter. Eine Ähnlichkeit der Spektren ist zum einen für die Bestrahlungen von 50 und 100 kGy zu erkennen, zum anderen für die Bestrahlungen von 500 und 1000 kGy. Eine sichere Aussage über die Gleichheit von entstehenden Absorptionszentren bei kleinen und großen Dosen ist aufgrund dieser Untersuchung nicht möglich.

   Es ist plausibel, dass in verschiedenen Dosisbereichen unterschiedliche Absorptionszentren vorwiegend gebildet werden. Dies wurde von [Har69] auch für Polystyrol beobachtet (vgl. Kap. 3.3.3, S. 21).

   Eine Erklärung für die erhöhte Strahlenempfindlichkeit bei niedrigen Dosen ist somit ein Sättigungseffekt einer Art von Absorptionszentren, die sich in diesem Dosisbereich entwickelt und bei größeren Dosen dann von einer konkurrierenden Spezies verdrängt wird.

   Die in den Röntgenbestrahlungen entstehenden Absorptionszentren sollten für eine Vergleichbarkeit mit den ^{60}Co-Daten eine ähnliche spektrale optische Absorption aufweisen. Die in beiden Experimentierreihen entstehenden relativen Schäden pro Dosis sind in Abb. 6.14 für eine 1,2 kGy Röntgenbestrahlung und die 10 kGy-Bestrahlung aus [BP91a] dargestellt. Eine Ähnlichkeit der Spektren ist im Rahmen der Fehler und der Variationen der Experimentieraufbauten gegeben. Ein Knick in der Spektralverteilung der ^{60}Co-Bestrahlung deutet darauf hin, dass sich hier im Gegensatz zur Röntgenuntersuchung bereits zwei verschiedene Absorptionszentren entwickeln.

Die beiden letzten Punkte lassen prinzipiell an einer Vergleichbarkeit von Bestrahlungen mit sich über mehrere Größenordnungen erstreckenden Dosen zweifeln. Es ist jedoch einleuchtend, dass eine strahleninduzierte Veränderung des Materials eine andere Art von Schädigungsprozessen bei höheren Dosen hervorruft.

Eine zu kleinen Dosen hin stark ansteigende Strahlenempfindlichkeit von Polystyrol bedeutet für Strahlenresistenztests mit PS-basierten Fasern eine Aufhebung der

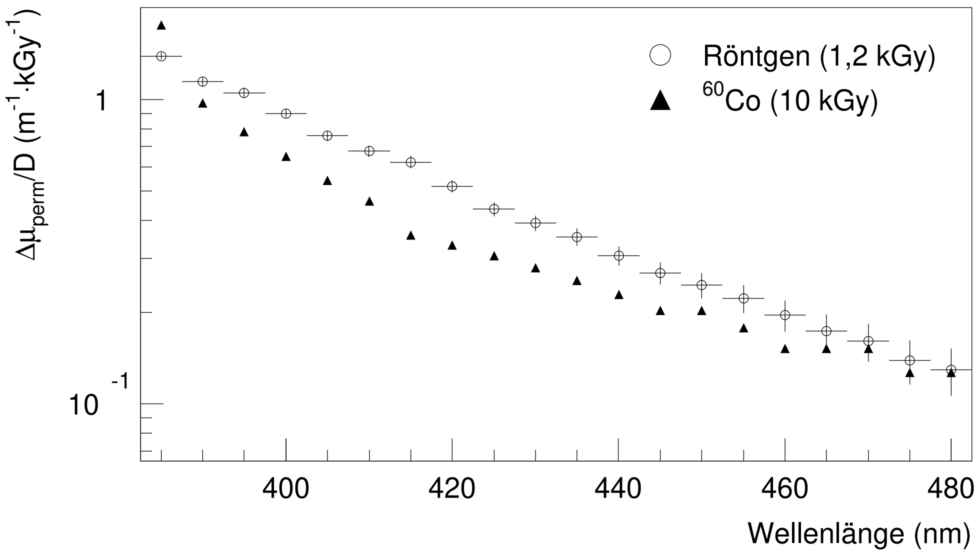

Abbildung 6.14: *Vergleich der Absorptionsspektren des relativen Permanentschadens* $\Delta\mu_{perm}/D$ *einer 1,2 kGy Röntgenbestrahlung mit der 10 kGy-Bestrahlung aus [BP91a]. Die entstehenden Spektren sind ähnlich.*

Annahme, dass ein Permanentschaden vom ungeschädigten Zustand über große Dosisbereiche linear zur applizierten Dosis ansteigt. Man kann so nicht zwangsläufig aus Hochdosisbestrahlungen auf das Strahlenverhalten der Faser bei kleinen Dosen im Detektor schließen. Für das Verhalten der Faser als Lichtleiter kann man im Detektorbetrieb eine im Vergleich zu hochdosierten Strahlenresistenztests (z. B. [BP91a]) um Faktor 10–15 schnellere Zunahme des Permanentschadens erwarten. Für viele Szintillatoren mit Polystyrol als Basismaterial sollte dieser Effekt ebenfalls auftreten, durch zusätzlich enthaltene Farbstoffe evtl. sogar verstärkt (vgl. dazu Abschnitt 6.3). Dies hat die Konsequenz, dass die Empfindlichkeit von Polystyrol gegenüber Strahlung bei kleinen Dosen in früheren Analysen häufig stark unterschätzt wurde.

6.2.6 Beobachtete Schäden in der Faser BCF-98

In den vorliegenden Online-Untersuchungen der Polystyrolfaser BCF-98 wurden mehrere Absorptionszentren beobachtet, die sich in ihrer spektralen Verteilung sowie der zeitlichen Entwicklung ihrer Entstehung und Rückbildung unterscheiden. Ihre Eigenschaften sollen hier kurz zusammengefasst werden:

a) **Stabile Absorptionszentren:** Sie werden in jeder Bestrahlung gebildet und entstehen in allen durchgeführten Untersuchungen, die sich bis zu Gesamtdosen von 6 kGy erstreckten, proportional zur applizierten Dosis. Sie heilen nicht aus. Der durch sie hervorgerufene optische Schaden ist als Permanentschaden wohlbekannt und erstreckt sich über ein breites Spektrum im UV-Bereich, das sich dieser optischen Untersuchung entzieht, bis in den blauen Bereich der Faser. Dabei steigen die hier beobachteten Permanentschäden $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}$ stets zu kleinen Wellenlängen hin an. Die Größe des Schadens ist unabhängig von der Dosisleistung im hier abgedeckten Bereich von 32 bis 130 Gy/h. Auch das Vorkommen von Sauerstoff, in der Faser gelöst bzw. in der Umgebungsatmosphäre, während der Bestrahlung hat keinen nachweisbaren Einfluss.

b) **Radikalische Absorptionszentren:** Ohne gelösten Sauerstoff in der Faser wurde ein starker Anstieg der Absorption zu kleinen Wellenlängen hin beobachtet (vgl. Abb. 6.1, S. 47). Zusätzlich bildet sich ein schwacher Peak um 525 nm aus. Diese Absorptionszentren sind relativ stabil, wenn sie nicht mit Sauerstoff weiterreagieren können[7]. Unter Sauerstoffeinfluss heilen sie vollständig aus. Dieser Absorptionsschaden wird i. Allg. mit im Polystyrol entstehenden Radikalen in Verbindung gebracht.
Das gleiche optische Schädigungsspektrum wie ohne Sauerstoff ergibt sich bei Bestrahlungen mit hoher Dosisleistung mit in der Faser vorhandenem Sauerstoff in den ersten Minuten der Bestrahlung. Es sollte sich also bei den beobachteten Radikalen um die in Polystyrol primär entstehenden Benzylradikale handeln [WSC93, Har69].

c) **Kurzlebige Absorptionszentren:** In den Bestrahlungen von BCF-98 in Luft wurde stets eine innerhalb von ca. 1–2 Stunden ausheilende kurzlebige Absorption um die Wellenlänge von 420 nm beobachtet (vgl. Abb. 6.3, S. 51). Sie läuft bereits bei schwacher Absorption in Sättigung. Die schnelle Rückbildung lässt auf einen radikalischen Charakter schließen. Das Auftreten dieser kurzlebigen Absorptionszentren in frühen Bestrahlungsphasen liefert ein Indiz dafür, dass es sich hier entweder um das primär entstehende Benzylradikal handelt, welches bei Bestrahlungen mit geringen Dosen zum Großteil entsteht oder ein sehr schnell gebildetes Folgeprodukt der Strahlenschädigung, z. B. ein Peroxidradikal.
An freien Benzylradikalen in Cyclohexan-Lösung wurden neben einer starken Absorption im UV-Bereich drei schwache Absorptionspeaks zwischen 415 und 460 nm gefunden [Hug81], wobei ein Peak um 458 nm am ausgeprägtesten ist. Diese Peaks verschmelzen im hier eingesetzten Experiment zu einem Absorptionsband.
In Bestrahlungen ohne Sauerstoff wurde diese Art von Zentren nicht beobachtet. Es ist dabei aber nicht auszuschließen, dass eine Überdeckung dieser sehr schwach ausgeprägten Absorption durch andere Zentren stattfand.

6.2.7 Modell zur Erklärung der Abläufe der Luft-Bestrahlungen

Das Auftreten von kurzlebigen Absorptionszentren in Polystyrol ist ein bislang unbeobachteter Effekt. Er kann allein durch eine Untersuchung mit hoher Frequenz während und nach Bestrahlung sowie langen Transmissionsstrecken erfasst werden.

---

[7] Dies gilt zumindest bei den hier vorgestellten Beobachtungszeiten und Konzentrationen der Verbindungen im Polymer.

Das Auftreten des kurzlebigen Schadens bedeutet, dass sich neben dem entstehenden Permanentschaden zu jeder Zeit während der Bestrahlung ausheilende Verbindungen im Polymer befinden. Im Folgenden wird ein Modell vorgeschlagen [Wic02], welches die Kinetiken der beobachteten Effekte vereint. Grundlage des Modells sind zwei Annahmen:

1. Während der Bestrahlung des Polymers entstehen als primärer Prozess im Moment der Energiedeposition allein Radikale R•.

2. Diese Radikale reagieren über einen Prozess zweiter Ordnung zu stabilen Permanentprodukten P, die den Permanentschaden hervorrufen.

Damit widerspricht dieses Modell der verbreiteten Annahme, dass permanente Absorptionszentren und radikalische völlig unabhängig voneinander entstehen.

Aus Abb. 6.2 (S. 48) kann man schließen, dass es sich bei den primär gebildeten Radikalen um dieselben handelt, die sonst nur beobachtet werden, wenn kein Sauerstoff in der Faser gelöst ist. Mit großer Wahrscheinlichkeit sind es Benzylradikale. Diese migrieren im Material und können wahrscheinlich mit dem Zwischenschritt der Oxidation über einen Prozess zweiter Ordnung zu einem stabilen Permanentprodukt P reagieren, das über den Terminationsprozess $\mathrm{R}\bullet + \mathrm{R}\bullet \longrightarrow \mathrm{P}$ (nach Gl. 3.10 bzw. 3.11 oder 3.12, S. 20) entsteht. Dieses Folgeprodukt P ist für den permanenten optischen Absorptionsschaden $\Delta\mu_{\text{perm}}$ verantwortlich.

Mit der Annahme, dass die permanenten Absorptionszentren P aus der Rekombination zweier Radikale entstehen, kann die Polymerschädigung zu verschiedenen Zeiten charakterisiert werden:

- **$\mathbf{t = 0, D \approx 0}$ (Beginn der Bestrahlung):** Radikale R• werden gebildet. Aufgrund der geringen Konzentration finden noch keine Rekombinationen zu Permanentprodukten statt. Die Anzahl der permanent absorbierenden Zentren im Polymer N_P ist gleich Null. Die Radikalzahl N_R steigt nach Gl. 4.2 (S. 25) mit der applizierten Dosis:

  $$dN_R = g_R \cdot \varrho \cdot dD \quad , \tag{6.1}$$

  mit der chemischen Ausbeute der Radikalbildung g_R und der Polymerdichte ϱ. Damit einhergehend steigt die durch die Radikale hervorgerufene optische Absorption (Gl. 4.9):

  $$d(\Delta\mu) = \sigma_R(\lambda) \cdot dN_R = \sigma_R(\lambda) \cdot g_R \cdot \varrho \cdot dD \quad . \tag{6.2}$$

  Es soll für die weitere Betrachtung angenommen werden, dass es in der Folge der laufenden Bestrahlung zu einer Sättigung der Radikalzahl N_R kommt. Es stellt sich ein Gleichgewicht der Produktion durch Strahlung und des Rückgangs durch Reaktion zum Permanentschaden ein.

- **$\mathbf{t \to \infty}$ (Lange Zeit nach Bestrahlungsende):** Der Ausheilvorgang ist komplett abgeschlossen, alle Radikale haben zu permanenten Absorptionszentren weiterreagiert. Die Radikalzahl im Polymer ist gleich Null, die Zahl der Permanentzentren $N_{P,\text{end}}$ ist halb so groß wie die Zahl der insgesamt während der

Bestrahlung gebildeten Radikale, da je zwei Radikale ein Permanentzentrum bilden:

$$N_P(t \to \infty) = N_{P,\text{end}} = \frac{1}{2} \cdot g_R \cdot \varrho \cdot D \quad . \tag{6.3}$$

Der optische Permanentschaden ergibt sich durch Multiplikation mit dem optischen Wirkungsquerschnitt der permanenten Absorptionszentren $\sigma_P(\lambda)$:

$$\Delta\mu_{\text{perm}} = N_{P,\text{end}} \cdot \sigma_P(\lambda) \quad , \tag{6.4}$$

bzw. als relativer Permanentschaden pro Dosis:

$$\frac{\Delta\mu_{\text{perm}}}{D} = \frac{1}{2} \cdot g_R \cdot \varrho \cdot \sigma_P(\lambda) \quad . \tag{6.5}$$

- **$\mathbf{t \geq t_e}$ (Zeit ab Bestrahlungsende):** Zu beliebigen Zeiten nach Bestrahlungsende ergeben sich nur noch Rekombinationen der Radikale zu Permanentschäden durch einen Prozess zweiter Ordnung. Die Zahl der Radikale nimmt so im Laufe der Ausheilung ab, in halbem Maße nimmt die Zahl der Permanentschadenszentren bis hin zur Endzahl $N_{P,\text{end}}$ zu. Zu allen Zeiten nach Bestrahlungsende ergibt sich deren Anzahl:

$$N_P(t) = N_{P,\text{end}} - \frac{N_R(t)}{2} \quad . \tag{6.6}$$

Der optische Schaden setzt sich aus beiden Absorptionszentren, radikalischen R• wie permanenten P, zusammen:

$$\Delta\mu(\lambda, t) = N_R(t) \cdot \sigma_R(\lambda) + N_P(t) \cdot \sigma_P(\lambda) \quad . \tag{6.7}$$

Einsetzen von Gl. 6.6 ergibt:

$$\Delta\mu(\lambda, t) = N_R(t) \cdot \left[\sigma_R(\lambda) \quad - \quad \frac{\sigma_P(\lambda)}{2}\right] \quad + \quad \underbrace{N_{P,\text{end}} \cdot \sigma_P(\lambda)}_{\Delta\mu_{\text{perm}}} \quad . \tag{6.8}$$

Formt man Gl. 6.2 und 6.5 um, ergeben sich die optischen Wirkungsquerschnitte der beiden Sorten von Absorptionszentren:

$$\sigma_R(\lambda) = \frac{1}{g_R \cdot \varrho} \cdot \left.\frac{d(\Delta\mu)}{dD}\right|_{D \approx 0} \tag{6.9}$$

für die Radikale und

$$\frac{1}{2}\,\sigma_P(\lambda) = \frac{1}{g_R \cdot \varrho} \cdot \frac{\Delta\mu_{\text{perm}}}{D} \tag{6.10}$$

für die Permanentzentren, welche eingesetzt in Gl. 6.8 folgende zeitliche Entwicklung der Absorption ergibt:

$$\Delta\mu(\lambda,t) - \Delta\mu_{\mathrm{perm}}(\lambda) = \frac{N_R(t)}{g_R \cdot \varrho} \cdot \left[\frac{d(\Delta\mu)}{dD} \bigg|_{D\approx 0} - \frac{\Delta\mu_{\mathrm{perm}}}{D} \right] \quad . \tag{6.11}$$

Wird jetzt angenommen, dass während der Bestrahlung die Sättigungskonzentration der Radikale $[R_{\mathrm{S}}\bullet]$ erreicht wurde, die sich nach Gl. 4.8 ergibt, gilt für die Zahl der Radikale zu Bestrahlungsende:

$$N_R(t_e) = N_{R,S} = \sqrt{\frac{g_R \cdot \varrho \cdot \dot{D}}{k'_R}} \quad , \tag{6.12}$$

bzw. nach Umformung:

$$\frac{N_R(t_e)}{g_R \cdot \varrho} = \underbrace{\frac{\dot{D}}{\sqrt{g_R \cdot \varrho \cdot k'_R \cdot \dot{D}}}}_{\tau^{-1}} = \dot{D} \cdot \tau \quad , \tag{6.13}$$

mit dem Parameter τ aus Gl. 4.18, der die Ausheilung der Radikale nach einem Prozess zweiter Ordnung beschreibt. Einsetzen von Gl. 6.13 in Gl. 6.11 zeigt die Differenz der optischen Schäden im Polymer zum Bestrahlungsende t_e und nach vollständiger Ausheilung ($t \to \infty$):

$$\Delta\mu(\lambda,t_e) - \Delta\mu_{\mathrm{perm}}(\lambda) = \dot{D} \cdot \tau \cdot \left[\frac{d(\Delta\mu)}{dD} \bigg|_{D\approx 0} - \frac{\Delta\mu_{\mathrm{perm}}}{D} \right] \tag{6.14}$$

Die Klammer in Gl. 6.14 enthält als ersten Term die Anfangssteigung des optischen Strahlenschadens zu Beginn der Bestrahlung ($t = 0$), in der nach diesem Modell allein Radikale sichtbar sind. Der zweite Term ist der relative optische Permanentschaden, der keine Radikale mehr enthält.

Aus der Differenz dieser Größen, multipliziert mit der Dosisleistung $\dot{D}$ und dem Ausheilparameter τ sollte sich nach Gl. 6.14 der direkt nach Bestrahlung ausheilende kurzlebige Absorptionsschaden ergeben.

Für die Bestrahlung mit 900 Gy aus Abb. 6.3 wurde die Sättigung der Radikalzahl während der Bestrahlung sicher erreicht. Der Parameter der Ausheilung beträgt $\tau = 1{,}1$ h (vgl. Abb. 6.5), die Dosisleistung der Bestrahlung lag bei 33 Gy/h. Die aus den Messdaten gewonnenen spektralen Verteilungen von Anfangssteigung $d(\Delta\mu)/dD$ der ersten 25 Bestrahlungsminuten und relativem Permanentschaden $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}/D$ wurden eingesetzt.

Abb. 6.15 zeigt im Vergleich den nach Gl. 6.14 errechneten ausheilenden Anteil (gefüllte Symbole) mit dem tatsächlich beobachteten Spektrum der kurzlebigen Bestrahlung, welches auch in Abb. 6.3 (dort dreifach verstärkt) ersichtlich ist.

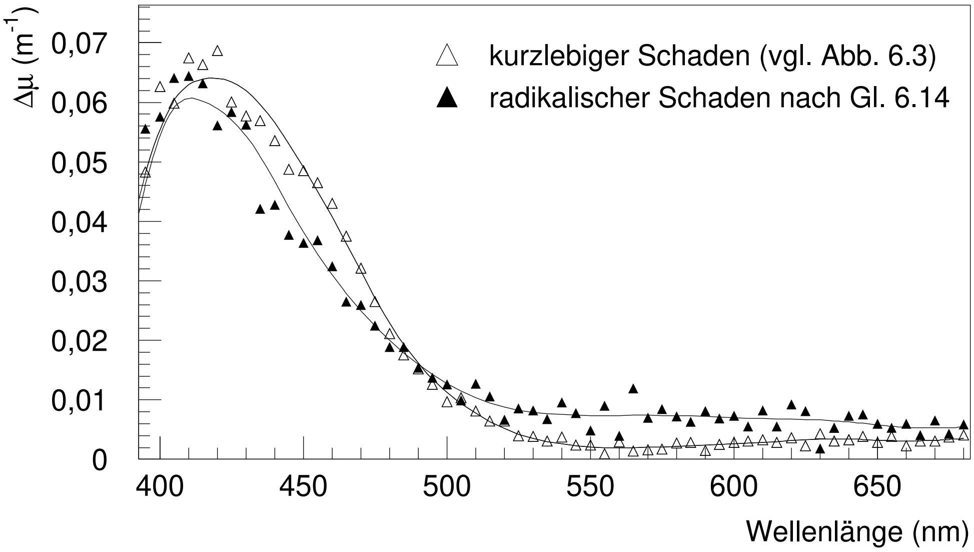

Abbildung 6.15: *Vergleich der auftretenden kurzlebigen Absorption, wie sie in BCF-98 beobachtet wurde (offene Symbole, vgl. Abb. 6.3) mit dem Spektrum der radikalischen Absorption, welches die Modellrechnung nach Gl. 6.14 ergibt (gefüllte Symbole). Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der beiden Spektren.*

Obwohl das Modell sich allein auf spektrale Daten aus dem Schadensanstieg zu Beginn der Bestrahlung und dem verbleibenden Permanentschaden lange nach Ende der Bestrahlung bezieht, ergibt sich sowohl in spektraler Verteilung als auch in der absoluten Größe mit guter Genauigkeit das tatsächliche Spektrum der kurzlebigen Absorption.

Die Schädigung des Polymers kann mit dem vorgeschlagenen Modell sehr gut beschrieben werden: Während der Bestrahlung ergeben sich in der primären Schädigung einzig Radikale, die nach einer Lebensdauer im Bereich von Stunden zu permanenten Absorptionszentren rekombinieren. Dabei nutzen sie wahrscheinlich Reaktionskanäle mit Sauerstoff. Die beobachtete kurzlebige Absorption mit einem Maximum bei 420 nm kann deshalb direkt von den Radikalen oder den zugehörigen Peroxidradikalen hervorgerufen sein, je nachdem, welche Verbindung eine höhere Lebensdauer aufweist. Wahrscheinlich handelt es sich um Benzylradikale. Es entstehen aus deren Rekombination halb so viele Permanentzentren wie beobachtete kurzlebige Absorptionszentren.

Das Modell bietet ebenfalls einen Ansatz zur Erklärung, warum bei Schädigung in Inertgas nach Ausheilung in Sauerstoff weniger permanente Absorptionszentren auftreten als bei Schädigung unter O_2-Einfluss, wie in [BP91b] beobachtet: Ist kein Sauerstoff in der Faser enthalten, kann eine Reaktion der Radikale zu Peroxiden nicht stattfinden. Die Dichte der Radikale erhöht sich bei großen Dosen so weit, dass andere Reaktionswege eingeschlagen werden und unsichtbare andere Folgeprodukte entstehen. Wird nach der Bestrahlung Sauerstoff eingeleitet, sind schon Teile der

Radikale auf andere Weise chemisch gebunden und können nicht mehr in einen sichtbaren Permanentschaden rekombinieren.

6.3 Polystyrol-Szintillator SCSF-38

Der spektrale Beobachtungsbereich von Szintillatoren ist durch die starke Absorption der beigemischten Farbstoffe bei kleineren Wellenlängen stärker eingeschränkt als bei klaren PS-Fasern. Eine Beobachtung von SCSF-38-Fasern ist ab 415 nm sinnvoll möglich. Auch sind nur kurze Szintillatorfasern verwendbar, damit das durch die Röntgenstrahlung induzierte Fluoreszenzlicht im Verhältnis zum Messlicht keine zu große Intensität erlangt[8]. Dadurch steigt die relative Unsicherheit der erlangten Daten etwas.

6.3.1 Zeitliche Entwicklung und Spektren der Absorption

Eine 10 cm lange Faser SCSF-38 wurde in 3 Stufen von je 725 Gy bis hin zu einer Maximaldosis von 2,18 kGy bestrahlt. Die Dosisleistung betrug 36 Gy/h. Zwischen den Schädigungen fand jeweils eine ca. 48-stündige Ausheilung statt. Abb. 6.16 zeigt den zeitlichen Verlauf der Schädigung bei vier Wellenlängen.

Im Bereich der größten Fluoreszenzlichtintensität (415–455 nm) gibt es wie in reinem

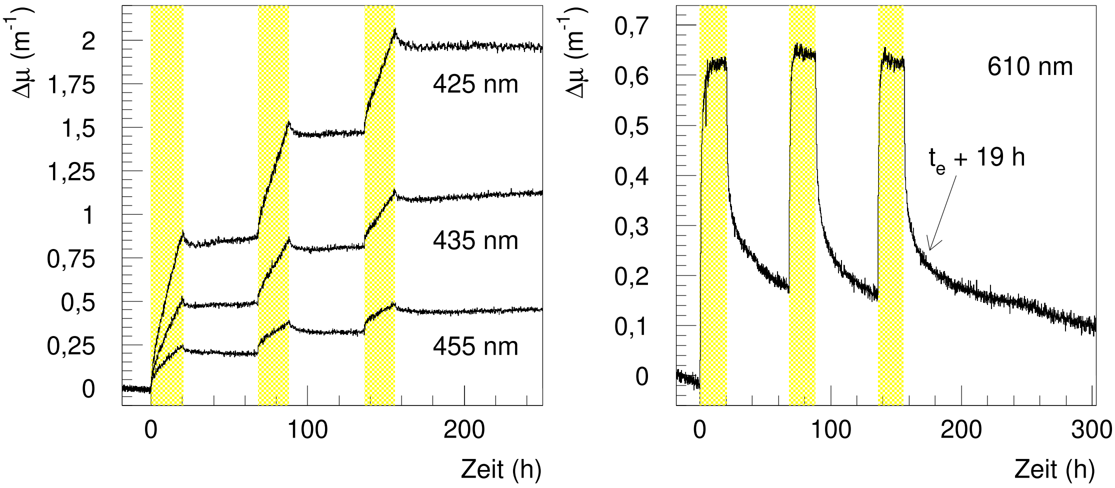

Abbildung 6.16: *Absorptionsentwicklung einer fraktionierten Bestrahlung von SCSF-38 für* $\lambda = 425, 435, 455, 610\,\mathrm{nm}$. $D = 3 \times 725$ *Gy,* $\dot{D} = 36$ *Gy/h. Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben. Der eingezeichnete Pfeil 19 h nach Ende der letzten Bestrahlung bezieht sich auf Abb. 6.18.*

---

[8] Im Experiment wird das Fluoreszenzlicht der Faser aus technischen Gründen im Nullsignal (keine Beleuchtung von Proben- und Referenzfaser durch das Messlicht) mit aufgenommen und für die Ermittlung der Transmission abgezogen. Weiteres dazu in Abschnitt 6.3.3.

PS einen Anstieg des Strahlenschadens zu kleinen Wellenlängen. Dieser ist zu großen Teilen nicht ausheilend. Der sehr kleine Anteil ausheilender Absorption ist für diesen Wellenlängenbereich vernachlässigbar. Er verhält sich ähnlich wie in der klaren PS-Faser. Auch die stabile kurzwellige Absorption kann der PS-Matrix der Faser zugeordnet werden.

Zusätzlich zur auch in reinem PS beobachteten kurzwelligen Absorption entsteht in der Faser eine starke Schädigung mit einem sehr breiten Spektrum um die Wellenlänge 610 nm. Bei Bestrahlung entwickeln sich hier sehr schnell Absorptionszentren. Ihre Entstehung läuft nach wenigen Stunden in Sättigung. Das Sättigungsniveau ist in jeder der drei Bestrahlungen gleich, es wird in den Folgebestrahlungen jedoch früher erreicht als in der ersten.

Nach Abschalten jeder Bestrahlung verschwindet die langwellige Absorption innerhalb einer Stunde zu über 50 Prozent, es folgt eine deutlich langsamere Ausheilung, die am Ende des dargestellten Beobachtungszeitraums noch nicht vollständig abgeschlossen war.

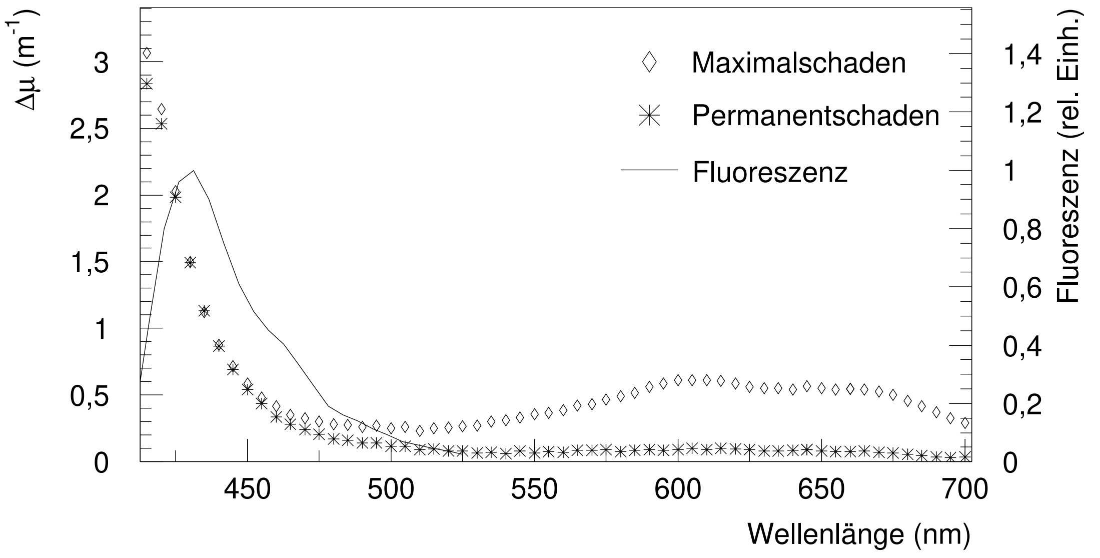

Abbildung 6.17: *Maximal- und Endschaden der Dreifachbestrahlung von SCSF-38 aus Abb. 6.16. Zur Orientierung ist das Fluoreszenzspektrum der Faser in relativen Einheiten eingezeichnet.*

Die Ausheilung dieser Absorption im roten Wellenlängenbereich lief allerdings in den Experimenten auf eine mit Null verträgliche Größe, so dass kein bemerkenswerter Permanentschaden angenommen wird. Die Spektren der maximalen Absorption und der zum Ende des Beobachtungszeitraums gemessenen sind in Abb. 6.17 dargestellt. Es ist nicht möglich, die Entwicklung der kurzlebigen Absorption im Roten einer der vorgestellten Kinetiken zuzuordnen. Die Ausheilung läuft direkt nach Abschalten der Bestrahlung schneller ab als erklärbar. Zudem ist erkennbar, dass es sich nicht um ein einziges Radikal handelt, das die Absorption in diesem

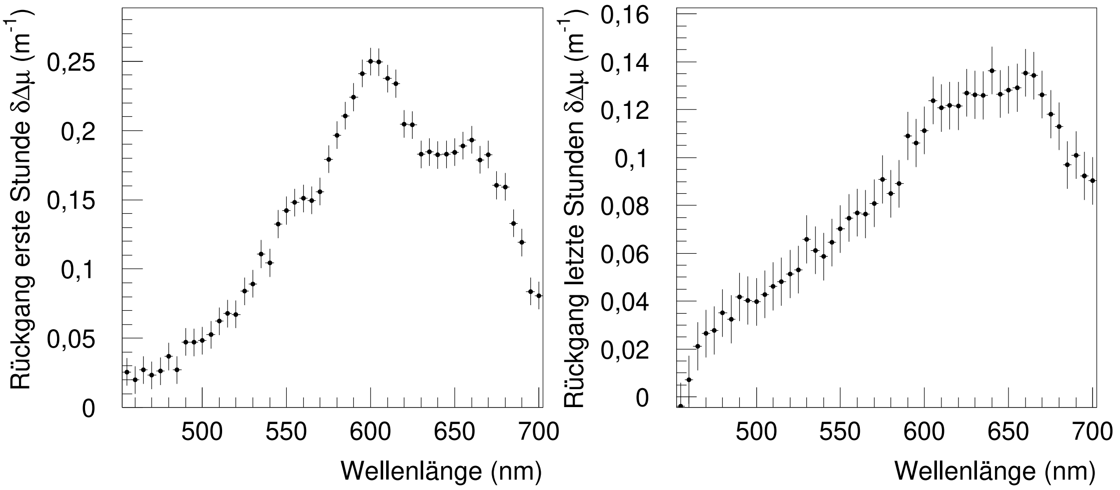

Abbildung 6.18: *Qualitative Separation des schnell und langsam ausheilenden Anteils aus Abb. 6.17. Links: Schadensrückgang in der ersten Stunde nach Bestrahlungsende. Beide Anteile der Absorption bei 610 und 650 nm nehmen stark ab. Rechts: Rückgang der Absorption ab 19 Stunden nach der Bestrahlung (Pfeil in Abb. 6.16) bis zum Ende der Beobachtung ($\Delta t = 138$ h). Der Anteil um 610 nm ist verschwunden, nur der breite Peak um 655 nm heilt weiter aus.*

Wellenlängenbereich hervorruft, sondern um mindestens zwei, die mit verschiedenen Zeitkonstanten zerfallen. Ihre Absorptionsspektren überlappen sich vollständig. Der in Abbildung 6.17 erkennbare Doppelpeak im Maximalschaden mit den Maxima bei 610 und 655 nm kann durch die Beobachtung der Entwicklung der Ausheilzeiten qualitativ getrennt werden: Direkt nach Bestrahlung findet die schnellste Ausheilung um das Maximum von 610 nm statt, die Ausheilung des Peaks um 655 nm ist deutlich langsamer. Abb. 6.18verdeutlicht dies: Sie zeigt das Abklingen des induzierten Strahlenschadens im roten Wellenlängenbereich während der ersten Stunde nach der letzten Bestrahlung (links) sowie den späteren Rückgang ab der neunzehnten Stunde nach Bestrahlungsende t_e (vgl. Pfeil in Abb. 6.16) bis zum Ende des Beobachtungszeitraums. Während der ersten Stunde heilen die Wellenlängen um 610 nm sehr stark aus, sie sind in der späteren Ausheilung (Abb. 6.18 rechts) nicht mehr nachzuweisen.

Ein Vergleich mit dem Schadensanstieg der ersten Bestrahlungsphase (20 Minuten) der ersten Bestrahlung zeigt in Abb. 6.19 eine sehr schnelle Zunahme beider Absorptionszentren (610 und 655 nm) von Beginn an. Im Anstieg der Absorption zum Bestrahlungsstart ist das Zentrum um 610 nm im Verhältnis zu dem bei 655 nm etwas weniger deutlich ausgeprägt als in der schnellen Ausheilung (Abb. 6.18 links). Die schnelle Entwicklung bei Bestrahlung ist ein Indiz für zwei sich primär entwickelnde Absorptionszentren im roten Bereich im Szintillator SCSF-38. Sie unterscheiden sich aber deutlich im Zeitverhalten der Ausheilung.

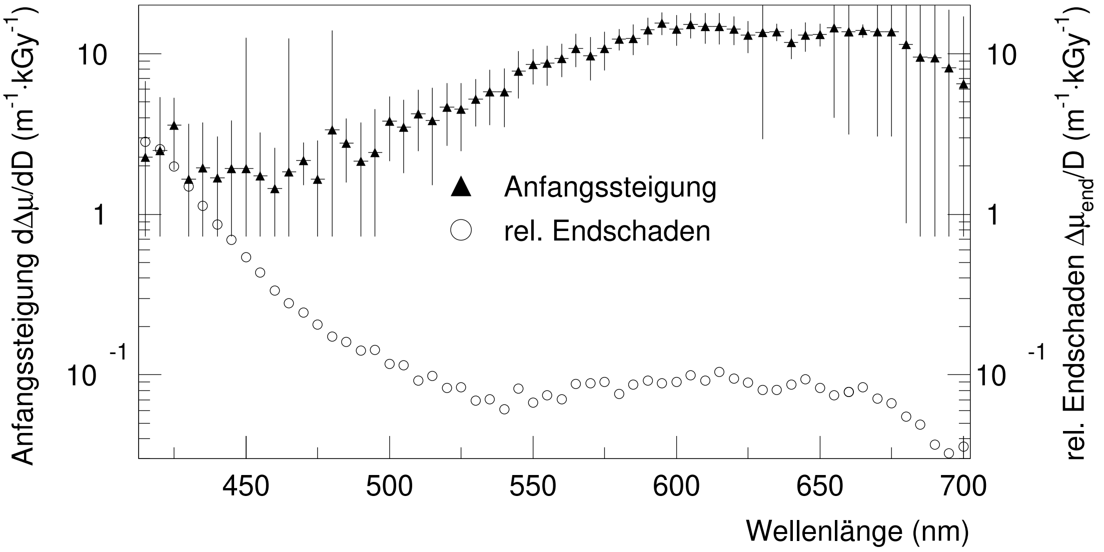

Abbildung 6.19: *Steigung der Absorptionszunahme in den ersten 20 Minuten der ersten Bestrahlung aus Abb. 6.16 im Vergleich zum relativen Endschaden* $\Delta\mu_{end}/D$ *zum Schluss der Beobachtung. Beide Absorptionszentren im Roten (610 und 655 nm) entwickeln sich stark ab Beginn der Bestrahlung und sind im Endschaden fast vollständig verschwunden.*

6.3.2 Permanentschadensentwicklung

Aus Abb. 6.16 ist bereits für die dargestellten Wellenlängen ersichtlich, dass der Zuwachs des Permanentschadens von Bestrahlung zu Bestrahlung geringer wird, obwohl die jeweilige Dosis mit 725 Gy für alle Schädigungen gleich bleibt. Dies ist am Beispiel der Wellenlänge von 430 nm in Abb. 6.20 verdeutlicht: Der Schadenszuwachs der ersten Bestrahlung liegt bei 0,62 m^{-1}, er sinkt bei Verabreichung der zweiten 725 Gy auf 0,43 m^{-1} und weiter auf 0,36 m^{-1} in der dritten Bestrahlung. Im Gegensatz zur reinen PS-Faser lässt sich schon bei kleinen Bestrahlungsdosen kein linear mit der Dosis ansteigender Permanentschaden beobachten. Nimmt man für größere Dosen vereinfachend einen linearen Verlauf des Anstiegs an (Abb. 6.20 rechts), so lautet die angepasste Funktion für diese Wellenlänge:

$$\Delta\mu(\mathrm{D}) = (0,19 \pm 0,02)\,\mathrm{m}^{-1} + (0,59 \pm 0,02)\,\mathrm{m}^{-1} \cdot \mathrm{D/kGy} \quad .$$

Eine Zunahme des Permanentschadens ist in diesem Szintillator stets größer als im Grundmaterial (Steigung $\mathrm{d}\Delta\mu_{\mathrm{PS}}/\mathrm{dD}(430\,\mathrm{nm}) = (0,46 \pm 0,15)\ \mathrm{m}^{-1} \cdot \mathrm{kGy}^{-1}$, vgl. Abschnitt 6.2.4 bzw. Anhang B.3), aber vergleichbar. Bei Dosen unter einem kGy ergibt sich zusätzlich ein steilerer Verlauf. Dieses Verhalten zeigt sich auch bei anderen Wellenlängen. Eine höhere Strahlenempfindlichkeit bei kleinen Dosen bis zu 10 kGy, die bei der PS-Faser beobachtet wurde, setzt sich so im Szintillator verstärkt zu noch kleineren Dosen unterhalb von 1 kGy fort. Für eine genauere Abschätzung der erhöhten Strahlenempfindlichkeit sind weitere Untersuchungen bei kleinen Dosen notwendig.

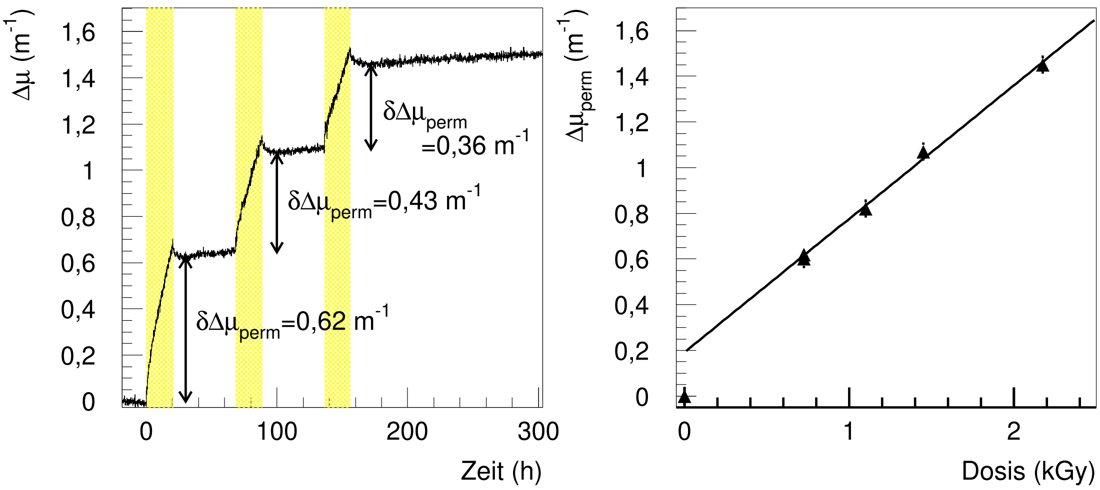

Abbildung 6.20: *Links: Zeitlicher Verlauf des induzierten Strahlenschadens einer 3-fach-Bestrahlung bei 430 nm.* $D = 3 \times 725$ *Gy,* $\dot{D} = 36$ *Gy/h. Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben. Der Zuwachs des Permanentschadens (Doppelpfeile) wird von Bestrahlung zu Bestrahlung kleiner. Rechts: Permanentschäden bei 430 nm gegen die applizierte Dosis (aus mehreren Messreihen). Eine an den Anstieg angepasste lineare Funktion hat einen Achsenabschnitt.*

In der Faser SCSF-38 bilden sich im Bereich der Fluoreszenz hauptsächlich stabile Absorptionszentren (vgl. Abb. 6.17). Ein Vergleich des Schadensanstiegs mit dem zum Ende des Beobachtungszeitraums verbleibenden Schaden zeigt in Abb. 6.19, dass sich bei Wellenlängen bis 425 nm im Rahmen der Fehler praktisch nur permanente Absorptionszentren bilden. Bei größeren Wellenlängen ist die Produktionsrate der Zentren in der ersten Bestrahlungsphase bis zu 250-mal größer als im beobachteten Endschaden. Dessen Ausheilung war zum Beobachtungsende noch nicht abgeschlossen.

6.3.3 Einfluss auf das Szintillationslicht

Die für die Einsetzbarkeit eines Szintillators im Experiment interessierende Größe ist die Fluoreszenzlichtausbeute. Die Szintillationslichtintensität, welche im Detektor registriert wird, ist ein Maß für die Energie des nachgewiesenen Teilchens. Dabei ist für eine gute Energieauflösung eine hohe Lichtausbeute erforderlich. Je höher die Gesamtzahl der Photonen, die im Messsystem gezählt werden, umso kleiner ist die relative Unsicherheit.

In einem idealen Szintillator bleibt die Fluoreszenzlichtausbeute unabhängig von allen äußeren Einflüssen wie Temperatur und Umgebungsatmosphäre konstant. Für den Szintillator SCSN-38[9] ist allerdings bekannt, dass er in sauerstoffhaltiger At-

---

[9] Dieser PS-basierte Szintillator der Firma Kuraray ist in Plattenform gebaut. Er besteht aus denselben Komponenten wie der SCSF-38-Kern.

mosphäre eine um bis zu 8 % geringere Fluoreszenzlichtausbeute besitzt als unter Inertgas. Dieser Effekt wird als Quenching bezeichnet [HH93]. Ein Einfluss der Temperatur auf Szintillatorfasern wird zurzeit untersucht, wobei sowohl Transmissions- als auch Fluoreszenzverhalten getestet werden [Zie]. Eigene Experimente zeigten für eine 10 cm lange SCSF-38-Faser einen Transmissionsrückgang von bis zu ein Prozent pro Kelvin Temperaturerhöhung.

Durch Strahlung entstehende Absorptionszentren können das entstandene Fluoreszenzlicht auf dem Weg durch die Faser zum Photomultiplier abschwächen. Es können durch Bestrahlung aber auch die Szintillations- und Wellenlängenschieberfarbstoffe selbst in Mitleidenschaft gezogen werden, so dass die primäre Lichtausbeute sinkt. Im ersten Fall ist davon auszugehen, dass sich ebenfalls die spektrale Intensitätsverteilung des gemessenen Fluoreszenzlichtes verändert. PS bildet bei kleinen Wellenlängen eine erhöhte Absorption aus, größere Wellenlängen werden weniger abgeschwächt. Für einen Einsatz im Detektor gewinnt so auch die spektrale Empfindlichkeit des verwendeten Auslese-Photomultipliers an Bedeutung.

Werden die Farbstoffe direkt angegriffen, kann es evtl. bei leichter Schädigung ebenfalls zur spektralen Verschiebung des Fluoreszenzlichtes kommen. Bei vollständiger Zerstörung der Farbstoffe sollte bei gleichem Emissionsspektrum allein die Fluoreszenzlichtintensität abnehmen. In jedem Fall ist eine Beeinträchtigung der Ergebnisse des Detektors die Folge.

Tritt zusätzlich zu einer dauerhaften Schädigung des Szintillators eine kurzlebige strahleninduzierte Absorption auf, die mit dem Fluoreszenzlichtspektrum der Faser überlappt, kann es zu einer ständig variierenden Detektorantwort kommen, die aufwendig verfolgt und rekalibriert werden muss.

Das durch die Röntgenbestrahlung induzierte Fluoreszenzlicht wird durch das Online-Experiment mit aufgenommen; es trifft direkt als Untergrundsignal auf die Photokathode des Multipliers. Eine spektrale Separation findet nicht statt. Die Fluoreszenzlichtintensität ist kurzfristigen Schwankungen durch die Röntgenquellenleistung ausgesetzt, die mit einer Instabilität von etwa 3 % abgeschätzt wird. Leichte Änderungen der Lichtintensität können so zwar nicht erfasst werden, stärkere Veränderungen lassen sich aber qualitativ erkennen. Dabei muss beachtet werden, dass es sich bei der Aufnahme des Fluoreszenzlichtes um direkte Daten aus dem Experiment handelt, die im Gegensatz zu den Verhältnisdaten der Transmissionsmessungen sehr empfindlich auf längerfristige absolute Schwankungen des Lichtsignals reagieren und deshalb auf solche Einflüsse hin untersucht werden müssen.

Nach Abschalten der Röntgenquelle wird in der Ausheilungsphase nur mehr die Transmission der Faser experimentell erfasst, eine Aufnahme der Fluoreszenzlichtentwicklung entzieht sich dem Experiment.

Die Entwicklung des integral aufgenommenen Szintillationslichtes der vorgestellten Dreifachbestrahlung ist in Abb. 6.21 dargestellt. Die zum Vergleich eingezeichnete durchgezogene Kurve ist berechnet. Sie stellt die Einflüsse auf das Fluoreszenzlicht dar, die allein durch eine Transmissionsveränderung während der Bestrahlung hervorgerufen werden. Für diese Berechnung wurde davon ausgegangen, dass das Szintillationslicht gleichmäßig in der Faser entsteht und sein Emissionsspektrum sich

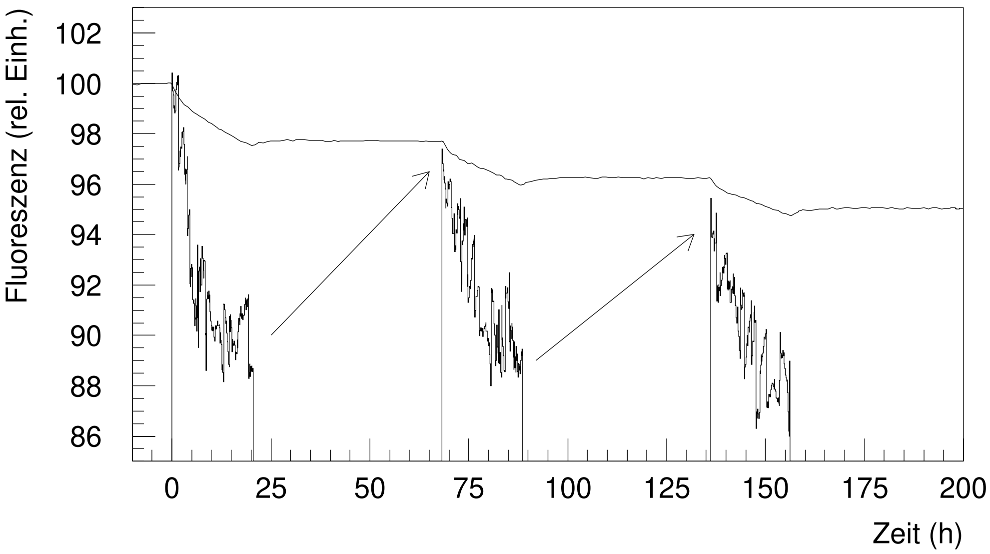

Abbildung 6.21: *Relativer Rückgang der direkt beobachteten Szintillationslichtausbeute der 3-fach-Bestrahlung von SCSF-38 für eine bestrahlte Faserlänge von 10 cm. Die durchgezogene Kurve entspricht der allein durch Transmissionsverluste entstehenden berechneten Fluoreszenzlichtentwicklung (Spektrum der Fluoreszenz s. Abb. A.2, S. 104). In den Ausheilphasen zwischen den Bestrahlungen nimmt die Transmission für das Fluoreszenzspektrum nicht nennenswert zu, während die Fluoreszenzlichtintensität sich stark erholt (Pfeile).*

nicht ändert. Zudem wird eine homogene Schädigung vorausgesetzt (vgl. Anhang C).

Der relative Rückgang der aufgenommenen Fluoreszenzlichtintensität ist in jeder Bestrahlung deutlich stärker ausgeprägt als die Abnahme der für das Fluoreszenzlicht berechneten Transmission. Während beispielsweise der Transmissionsrückgang während der ersten Bestrahlung 2,5 % ausmacht, geht die Fluoreszenzlichtausbeute um mehr als das vierfache auf ca. 90 % zurück. In den weiteren Bestrahlungen setzt sich dieses Verhalten fort: Die Transmission für isotrop emittiertes Licht reduziert sich auf 96 und 94,5 %, während das aufgenommene Fluoreszenzlicht deutlich weiter auf 89 und 87,5 % zurückgeht.

Es existiert also ein direkter Einfluss der Bestrahlung auf die Szintillationsfarbstoffe, denn eine derartig ausgeprägte Fluoreszenzlichtabnahme ist allein mit Transmissionsverlusten nicht erklärbar. Zudem differiert die zeitliche Entwicklung von Transmission und Fluoreszenzlichtausbeute sowohl während als auch nach der Bestrahlung: Während der Schädigungen zeigt sich insbesondere zu Beginn der ersten Bestrahlung im Verlauf der Fluoreszenzlichtentwicklung eine sehr starke Abnahme, die sich im weiteren Bestrahlungszeitraum abschwächt. Der Transmissionsrückgang im gesamten spektralen Bereich des Fluoreszenzlichtes ist hingegen annähernd linear und zeigt nur eine schwache Sättigung. In den Folgebestrahlungen ist dieses Verhalten der realen Fluoreszenzlichtentwicklung weniger ausgeprägt.

Nach den Bestrahlungen zeigt sich ein weiteres starkes Indiz für die Schädigung der Farbstoffe: Dies ist die Erhöhung der Fluoreszenzlichtausbeute vom Ende einer Bestrahlung zum Start der jeweiligen Folgebestrahlung (Pfeile in Abb. 6.21). Nach der ersten Schädigung erholt sich die Fluoreszenz von etwa 90 % des Ausgangswerts auf ca. 97 %, in der zweiten Bestrahlungspause geschieht dies in ähnlichem Umfang. Bei dieser beobachteten Form der Ausheilung des Farbstoffschadens kehrt die Lichtausbeute zum Start jeder Bestrahlung etwa auf den Wert zurück, der allein durch den Transmissionsrückgang erklärbar ist. Offensichtlich werden die Szintillationsfarbstoffe in der Faser durch die Bestrahlung inaktiviert, können sich aber bis zum Beginn der nächsten Bestrahlung 48 Stunden später fast vollständig regenerieren. Das absolute Signal des Referenzarms änderte sich während der gesamten Messzeit von über 400 Stunden um maximal 1,4 %, so dass weiter oben genannte Einflüsse der absoluten Lichtintensität nur für eine sehr kleine Unsicherheit verantwortlich sind.

Während aller drei gleich langen Bestrahlungen fällt das gemessene Fluoreszenzlicht im Verhältnis zur Anfangsintensität auf etwa dasselbe Niveau von ca. 90 % ab, in der ersten Bestrahlung damit am stärksten, in den Folgebestrahlungen schwächer. Kleinere weitergehende Abfälle der Intensität in der zweiten und dritten Schädigung sind mit dem sich von Bestrahlung zu Bestrahlung vergrößernden Transmissionsschaden zu erklären. Im Vergleich zu den beobachteten Transmissionsentwicklungen (s. Abb. 6.16 u. 6.17) ergeben sich also deutliche Diskrepanzen:

Im Fluoreszenzspektrum der Faser bilden sich hauptsächlich permanente Absorptionszentren und verursachen so fast ausschließlich einen mit der Dosis wachsenden Rückgang der Szintillationslichtausbeute (vgl. berechnete Entwicklung in Abb. 6.21). Im Gegensatz dazu nimmt die reale Fluoreszenzlichtausbeute bereits bei Verabreichung der ersten Bestrahlung sehr stark und nicht linear ab. In den folgenden 48 Stunden Bestrahlungspause findet eine fast vollständige Ausheilung statt. Es muss dementsprechend eine reversible Zerstörung bzw. Inaktivierung der Fluoreszenzfarbstoffe geben.

Der Transmissionsschaden zeigt eine vollständige Ausheilung nur im roten Wellenlängenbereich, in dem kein Fluoreszenzlicht transportiert wird. Hier erfährt die Absorption um 610 nm eine Sättigung auf demselben Niveau in allen Bestrahlungen; es zeigt sich ebenfalls bis zur jeweiligen Folgebestrahlung eine annähernd vollständige Ausheilung. Ein Zusammenhang der Schädigung der Fluoreszenzfarbstoffe und der kurzlebigen Absorption im Roten ist nicht auszuschließen, jedoch gleichfalls aus den rein qualitativen Betrachtungen nicht nachweisbar. In den Zeitabhängigkeiten von Absorption im Roten (s. Abb. 6.16) und Fluoreszenzrückgang (Abb. 6.21) finden sich keine Ähnlichkeiten.

6.3.4 Vergleich mit unabhängigen Messungen

Auch für die Schäden an SCSF-38 bzw. des plattenförmigen SCSN-38 liegen bereits Untersuchungsergebnisse anderer Experimentatoren vor. In [Dan96] wurde SCSN-38 an einer ^{60}Co-Quelle mit einer Dosisleistung von 2,2 kGy/h bestrahlt. Transmissionswerte der Proben liegen für die Wellenlängen 420, 430, 450 und 480 nm vor, die zugehörigen Bestrahlungsdosen liegen bei 1,6; 3,0; 5,4; 6,6; 8,6 und 21,2 kGy. Die höchste Bestrahlungsdosis wurde mit 1,4 kGy/h verabreicht. [Dan96] stellt eine lineare Abhängigkeit des optischen Permanentschadens in SCSN-38 von der applizierten Dosis fest. Tab. 6.1 stellt seine Daten denen der hier durchgeführten Röntgenbestrahlungen gegenüber. Die Werte aus [Dan96] stammen von der 21,2 kGy-Bestrahlung, die Permanentschadensanstiege der Röntgenbestrahlungen wurden gewonnen aus linearen Anpassungen an Datensätze für fünf Bestrahlungsdosen: 2 × 725 Gy, 1100 Gy, 1450 Gy und 2175 Gy.

	Permanentschadensanstieg $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}/\mathrm{D}\ (10^{-1}\mathrm{kGy}^{-1}\mathrm{m}^{-1})$			
	420 nm	430 nm	450 nm	480 nm
SCSN-38: 21,2 kGy [Dan96]	1,45±0,11	1,45±0,11	0,79±0,11	0,24±0,11
SCSF-38: 0,7–2,2 kGy	10,65±0,26	5,84±0,15	2,11±0,15	0,80±0,13

Tabelle 6.1: *Vergleich der mittleren Permanentschadensanstiege der Röntgenbestrahlungen ($\dot{D} = 32 \ldots 130$ Gy/h) mit Daten von ^{60}Co-bestrahlten SCSN-38-Platten aus [Dan96]($\dot{D} = 1{,}4$ kGy/h).*

Der Schadensanstieg bei 420 nm liegt bei kleinen Röntgendosen um Faktor 7 höher als bei den hochdosierten ^{60}Co-Bestrahlungen, bei größeren Wellenlängen nimmt der Faktor auf 3–4 ab, wobei jedoch die relative Unsicherheit zumindest bei den gering dosierten Bestrahlungen groß wird. Permanentschadensdaten der Röntgenbestrahlungen für weitere Wellenlängen sind in Anhang B.5 zu finden.

6.4 Polystyrol-Szintillatoren SCSF-81 und SCSF-81(Y7)

Die beiden Szintillatoren SCSF-81 und SCSF-81(Y7) unterscheiden sich allein durch den Farbstoff Y7, welcher in der einen Fasersorte zugesetzt ist. Wird dieser wellenlängenschiebende Farbstoff nicht geschädigt, sollte das Strahlenverhalten beider Fasern einander ähneln.

Die Faser mit Y7 wurde in [Bus97] in Luft untersucht. Es ergab sich ein schon während der Bestrahlung ausheilendes Absorptionsband mit einem Maximum bei 630 nm sowie eine teilweise ausheilende Absorption, die zu kleineren Wellenlängen hin anstieg. Eine Beobachtung der Faser mit Y7 ist nur oberhalb von 480 nm möglich, da direkt darunter das Absorptionsspektrum von Y7 beginnt.

Die blaue Faser SCSF-81 kann bei Wellenlängen bis zu 420 nm sinnvoll beobachtet werden. Die Messergebnisse aus [Bus97] für die Faser mit Y7 konnten bestätigt werden. Hier soll im Weiteren allein auf die Ergebnisse mit der blauen SCSF-81 eingegangen werden.

6.4.1 Zeitliche Entwicklung der Absorption

Abb. 6.22 zeigt das Schädigungsverhalten für SCSF-81 bei den Wellenlängen 455 nm und 625 nm. Die Dosis von je 740 Gy wurde in drei etwa 20,5-stündigen Phasen mit einer Dosisleistung von 36 Gy/h bis hin zu einer Maximaldosis von 2,22 kGy verabreicht. Zwischen den Bestrahlungen lagen jeweils ca. 48 Stunden Ausheilzeit.

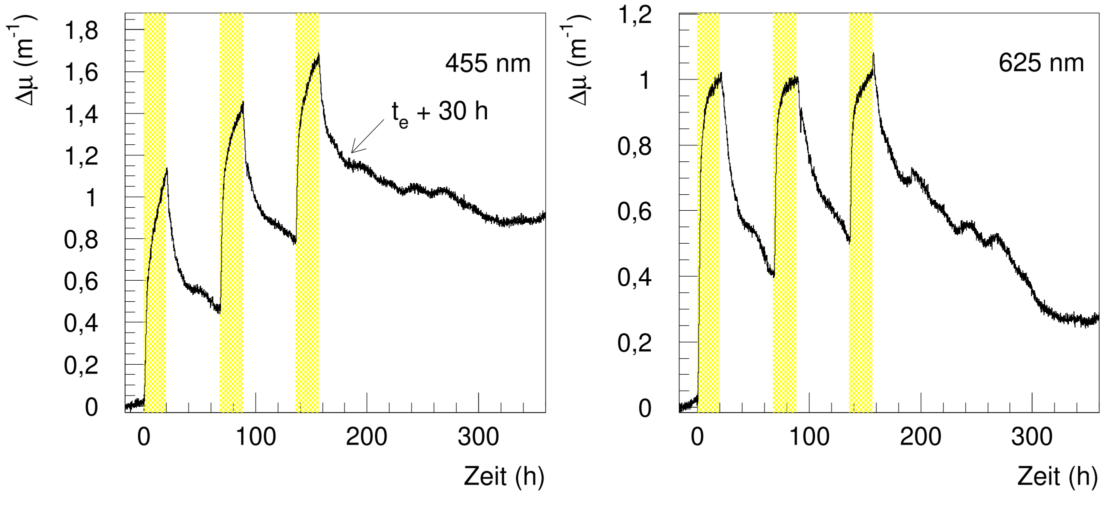

Abbildung 6.22: *Absorptionsentwicklung einer fraktionierten Bestrahlung von SCSF-81 bei den Wellenlängen 455 und 625 nm.* $D = 3 \times 740$ *Gy,* $\dot{D} = 36$ *Gy/h. Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben. Der eingezeichnete Pfeil 30 h nach Ende der letzten Bestrahlung bezieht sich auf Abb. 6.24.*

Um die kürzere Wellenlänge, die mittig im Szintillationsbereich liegt, ergibt sich eine starke kurzlebige Absorption, die sich zu kleineren Wellenlängen hin weiter verstärkt. Die Ausheilung läuft innerhalb von ca. zwei Tagen auf einen Schaden hinaus, der sich mit jeder der drei Bestrahlungen vergrößert. Die Ausheilung ist in diesen Zeiten der Bestrahlungspausen allerdings noch nicht abgeschlossen. Nach der ersten Bestrahlung heilt dabei die maximale Absorption bei 455 nm innerhalb dieses Zeitraums auf die Hälfte aus. Dies ist ein Regenerierungseffekt, der starke Auswirkung auf das Fluoreszenzlicht hat (vgl. Abschnitt 6.4.3).

Bei großen Wellenlängen um 625 nm ergibt sich ein sehr breites Spektrum einer sich schnell entwickelnden Absorption, die in jeder der drei Bestrahlungsphasen auf etwa demselben Niveau zu sättigen beginnt. Die Ausheilung ist nach 48 Stunden noch nicht abgeschlossen. An eine ca. 30-stündige Periode schneller Ausheilung schließt sich ein Zeitbereich langsamerer Ausheilung von etwa 120 Stunden an. In allen Ausheilungsverläufen zeigt sich dabei nach ca. 25–30 h eine charakteristische Schulter, ein Plateau von deutlich geringerer Ausheilungsgeschwindigkeit, nach dem sich der Schadensrückgang wieder verstärkt.

Für ein weiteres Experiment wurde die Faser mit 55-keV-Röntgenstrahlung mit einer Dosisleistung von ca. 3 Gy/h und einer Gesamtdosis von 60 Gy bestrahlt. Die Zeitverläufe sind in Abb. 6.23 dargestellt. Deutlich lassen sich hier die Anteile der kurzlebigen, der langsam ausheilenden und der permanenten Absorption aufgrund ihrer stark differierenden zeitlichen Abhängigkeiten trennen. In der niederdosierten Bestrahlung ist die bei den Bestrahlungen mit hohen Dosen beobachtete Schulter in der Ausheilung nicht erkennbar.

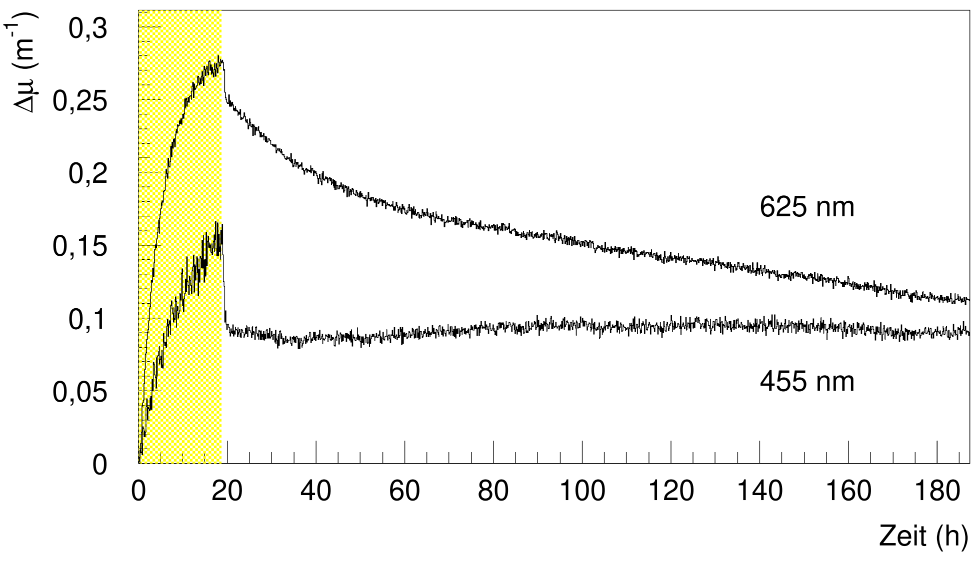

Abbildung 6.23: *Absorptionsentwicklung einer SCSF-81-Bestrahlung mit 55-keV-Röntgenstrahlung bei geringer Dosisleistung für* $\lambda = 455\,nm$ *und* $625\,nm$. $D = 60\,Gy$, $\dot{D} = 3{,}2\,Gy/h$. *Der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben.*

6.4.2 Absorptionsspektren der Strahlenschäden

Im Experiment mit niedriger Dosisleistung (Abb. 6.23) ist bereits innerhalb von 30 Minuten der kurzlebige Anteil der Ausheilung verschwunden. Bei 455 nm zeigt sich danach nur ein permanenter Schaden, bei größeren Wellenlängen im Roten schließt sich eine langsame Ausheilung an.

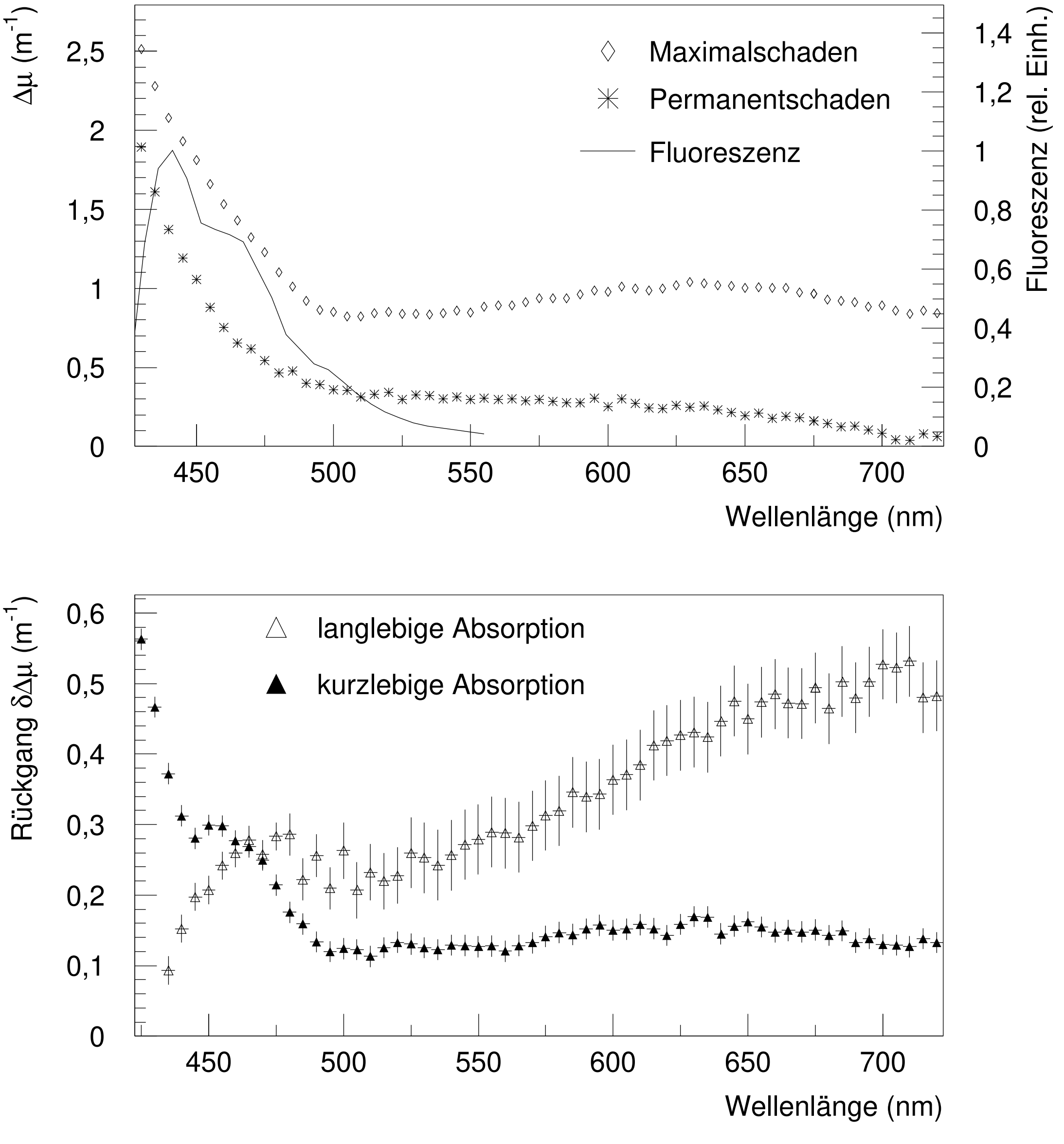

Abbildung 6.24: *Spektren der strahleninduzierten Absorptionen in SCSF-81.* $D_{ges} = 2{,}2\,kGy$, $\dot{D} = 36\,Gy/h$. *Oben: Maximal- und Permanentschaden, die starke Überlappung mit dem Fluoreszenzbereich der Faser zeigen. Unten: Rückgang der kurzlebigen Absorption (bis 5 h nach Bestrahlungsende), die sich ebenfalls stark im Fluoreszenzlichtspektrum ausbildet, und der langlebigen ausheilenden Absorption (ab 30 h nach Bestrahlungsende).*

Die Aufteilung in schnell und langsam ausheilende Absorption sowie Permanentschaden wurde ebenfalls für die hochdosierte Dreifachbestrahlung (Abb. 6.22) durchgeführt. Die Anteile sind in Abb. 6.24 dargestellt. Maximal- und Permanentschaden wurden zum Ende der letzten Bestrahlung bzw. zum Ende der beobachteten Ausheilung direkt aus den Messdaten gewonnen. Der sich entwickelnde Permanentschaden wächst zu kleinen Wellenlängen hin stark an. Im Gegensatz zu reinem Polystyrol dehnt sich die Schädigung hier zu höheren Wellenlängen hin aus. Die Überlappung mit dem Emissionsspektrum ist groß.

Die ausheilenden Anteile wurden separiert, indem der Rückgang der Absorption über die ersten fünf Stunden nach Bestrahlungsende kurzlebigen Absorptionszentren zugeordnet wurde; der Anteil, der ab 30 Stunden nach Bestrahlungsende ausheilt, wird von langlebigen Absorptionszentren hervorgerufen (Abb. 6.24 unten).

Der Schaden, der durch ausheilende Absorptionszentren hervorgerufen wird, erstreckt sich über das gesamte Spektrum. Bei Wellenlängen im Szintillationsbereich ist der Anteil sehr schnell rückbildender Absorption besonders groß (bis 500 nm), während der langsam ausheilende Anteil sich zu größeren Wellenlängen hin verstärkt. Für die Bestrahlung mit $D_{ges} = 60\,Gy$ (Abb. 6.23) ergeben sich gleiche spektrale Verteilungen, der Permanentschaden wurde für große Wellenlängen allerdings nicht während der Experimentierzeit erreicht.

Eine Abschätzung der dosisabhängigen Entstehung des Permanentschadens, wie er in den Fasern BCF-98 und SCSF-38 vorgenommen wurde, ist für diese Faser nicht möglich, da während der Bestrahlung keine Trennung der ausheilenden Absorption von der permanent induzierten stattfinden kann. Damit entfällt eine Aussage, ob sich der beobachtete Permanentschaden proportional zur Dosis entwickelt.

Eine Beschreibung der ausheilenden Schädigung mit einer der vorgestellten Kinetiken ist nicht möglich, da sich die beiden verschieden schnell ausheilenden Absorptionsbereiche vollständig überlappen und so keine eindeutige Zuordnung möglich ist. Eine Anpassung an die letzte Phase der Ausheilung, in der sich allein die Rückbildung der langsam ausheilenden Absorption zeigt, ist mit zu großen Fehlern behaftet.

6.4.3 Einfluss auf das Szintillationslicht

Wie in SCSF-38 wurde während der Bestrahlung das Fluoreszenzlicht beobachtet. Die reale Entwicklung und die berechnete durch Transmissionseffekte hervorgerufene Entwicklung differieren wesentlich (s. Abb. 6.25).

Der allein durch Transmissionseffekte begründete Verlauf (durchgezogene Linie) ist im Gegensatz zur SCSF-38 (Abb. 6.21, S. 75) von starker Ausheilung nach den Bestrahlungen geprägt. Dies ist bedingt durch die vollständige Überlappung von Emissionsspektrum und kurzlebiger Absorption. Die berechnete Entwicklung kann nur während der fünf Anfangsstunden der ersten Bestrahlung den aufgenommenen Verlauf der Fluoreszenzlichtausbeute beschreiben, danach nimmt diese deutlich stärker ab. Während die Transmissionseffekte einen Rückgang auf 95 % im Verlauf

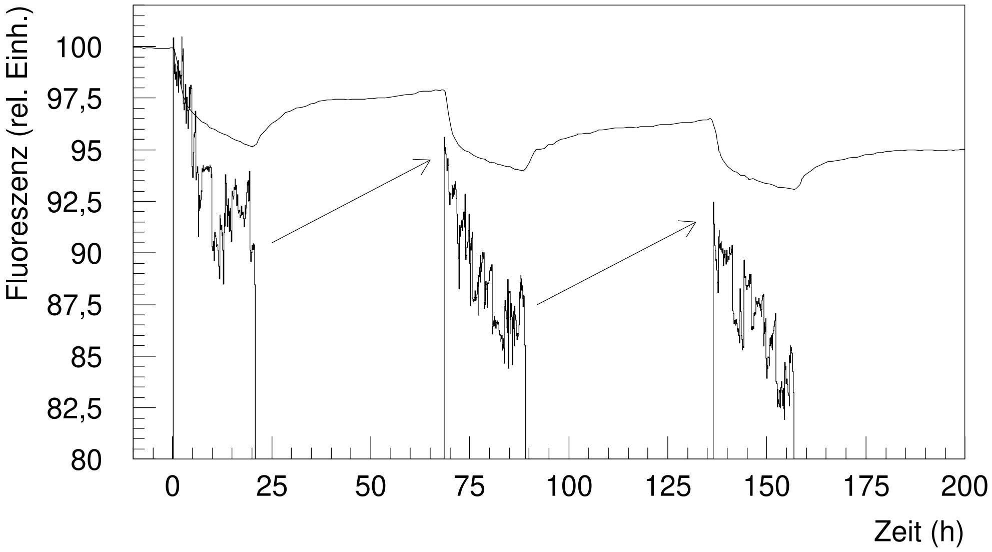

Abbildung 6.25: *Relative Fluoreszenzlichtentwicklung einer 9,5 cm langen SCSF-81-Faser aus der Dreifachbestrahlung in Abb. 6.22. Die durchgezogene Linie entspricht der berechneten Entwicklung der Fluoreszenzlichtausbeute aus den Transmissionsdaten. In den Ausheilphasen nimmt die transmissionsbedingte Fluoreszenzlichtausbeute in etwas geringerem Maße zu als die real gemessene (Pfeile).*

der ersten Bestrahlung erklären, ist die tatsächliche Fluoreszenzlichtausbeute auf ca. 91 % zusammengebrochen. In der ersten Ausheilphase verbessert sich die Transmission für das Fluoreszenzlicht um drei auf 98 %, die reale Ausbeute nimmt um ca. 4 % und damit im Rahmen der Fehler um den gleichen Wert zu.

In den Folgebestrahlungen findet eine sukzessive Abweichung des realen Signals von den Transmissionsberechnungen statt. Es liegt auch hier nahe, dass die Farbstoffe selbst von der Strahlung beeinträchtigt werden. Der zeitliche Verlauf der Fluoreszenzlichtreduktion findet sich nicht in dem durch Transmissionsrückgang erklärbaren Verlauf wieder. Trotz vorhandener Unsicherheiten im aufgenommenen Signal ist eine eher lineare Abnahme der Lichtintensität während der Bestrahlungszeiträume wahrzunehmen. Deutliche Sättigungserscheinungen wie im berechneten Transmissionsverlauf zeigen sich nicht.

Insgesamt ist die Abnahme der Fluoreszenzlichtausbeute mit insgesamt ca. 16 % bei einer Dosis von 2,2 kGy erheblich stärker als bei SCSF-38 (12,5 %). Ein Großteil der Verbesserung der Fluoreszenzlichtausbeute in den Bestrahlungspausen kann in dieser Faser der Verbesserung der Transmission zugeordnet werden. Eine Reaktivierung der Farbstoffe findet in deutlich geringerem Maße statt als in der Faser SCSF-38.

6.4.4 Bestrahlung einer vorgeschädigten Faser

Insgesamt lassen sich in den Zeitabhängigkeiten sowie in den Absorptionsspektren der auftretenden Schäden Ähnlichkeiten für die Fasern SCSF-81 und SCSF-81(Y7) feststellen. Ein zu kleinen Wellenlängen hin ansteigender Absorptionsbereich ist auf die Polystyrolmatrix zurückzuführen, bei Wellenlängen um 630 nm ergibt sich ein breites nicht vollständig ausheilendes Absorptionsspektrum, das bei Y7-Zusatz deutlicher ausgeprägt ist. Eine Ausheilung bereits während der Bestrahlung wurde in der Faser mit grünem Farbstoff beobachtet [Bus97][10], in SCSF-81 nicht.

In SCSF-81 ergab sich ein weiterer Effekt: Das Schädigungsverhalten änderte sich gravierend, wenn die Faser vor Bestrahlung bereits größeren Dosen ausgesetzt war.

Die in einer fraktionierten Bestrahlung (Abb. 6.22) mit einer Röntgendosis von 2,2 kGy vorgeschädigte Faser wurde nach vollständiger Ausheilung ein weiteres Mal mit einer Dosis von 740 Gy mit 36 Gy/h bestrahlt. Der Verlauf der Schädigung ist in Abb. 6.26 dargestellt: Für die Wellenlängen 455 nm und 625 nm sieht man den Vergleich mit der ersten Bestrahlung aus Abb. 6.22, die mit derselben Dosis unter gleichen Bedingungen stattfand.

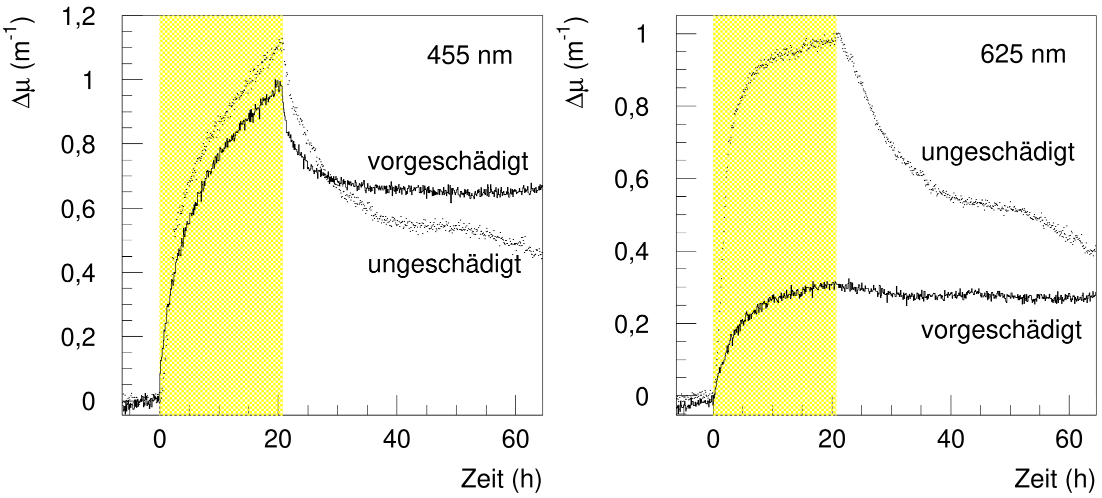

Abbildung 6.26: *Schädigungsverlauf der Bestrahlung einer mit 2,2 kGy vorgeschädigten SCSF-81-Faser (durchgezogene Linie) im Vergleich zur Absorptionsentwicklung der ungeschädigten Probe (gepunktet). Dargestellt sind $\lambda = 455$ nm und 625 nm, der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben. $D = 740$ Gy, $\dot{D} = 36$ Gy/h.*

Bei einer Wellenlänge von 455 nm (Abb. 6.26 links) zeigt die vorgeschädigte Faser einen etwas kleineren Maximalschaden als die erstmalig bestrahlte Faser; der zeitliche Verlauf der Absorptionszunahme ist sehr ähnlich. In der Ausheilung zeigt sich bei der ungeschädigten Faser ein stärkerer Absorptionsrückgang als bei der vorbestrahlten. Insbesondere nach längeren Zeiten nimmt die in der vorher unbestrahlten Faser induzierte Absorption weiter ab, während sie in der vorgeschädigten Probe

---

[10] Dieser Effekt tritt in SCSF-81(Y7) nach etwa 10 h Bestrahlung mit $\dot{D} = 36$ Gy/h auf.

nach ca. 10 h Ausheilung auf konstantem Niveau bleibt.

Ein völlig unterschiedliches Verhalten zeigen die Fasern im roten Wellenlängenbereich: Bei 625 nm ist in der vorgeschädigten Faser nur ein sehr geringer Anstieg der Absorption zu verzeichnen, der etwa 25 % des Maximalschadens in der erstmalig bestrahlten Faser ausmacht. Der Schädigungsverlauf ist ähnlich, es wird während

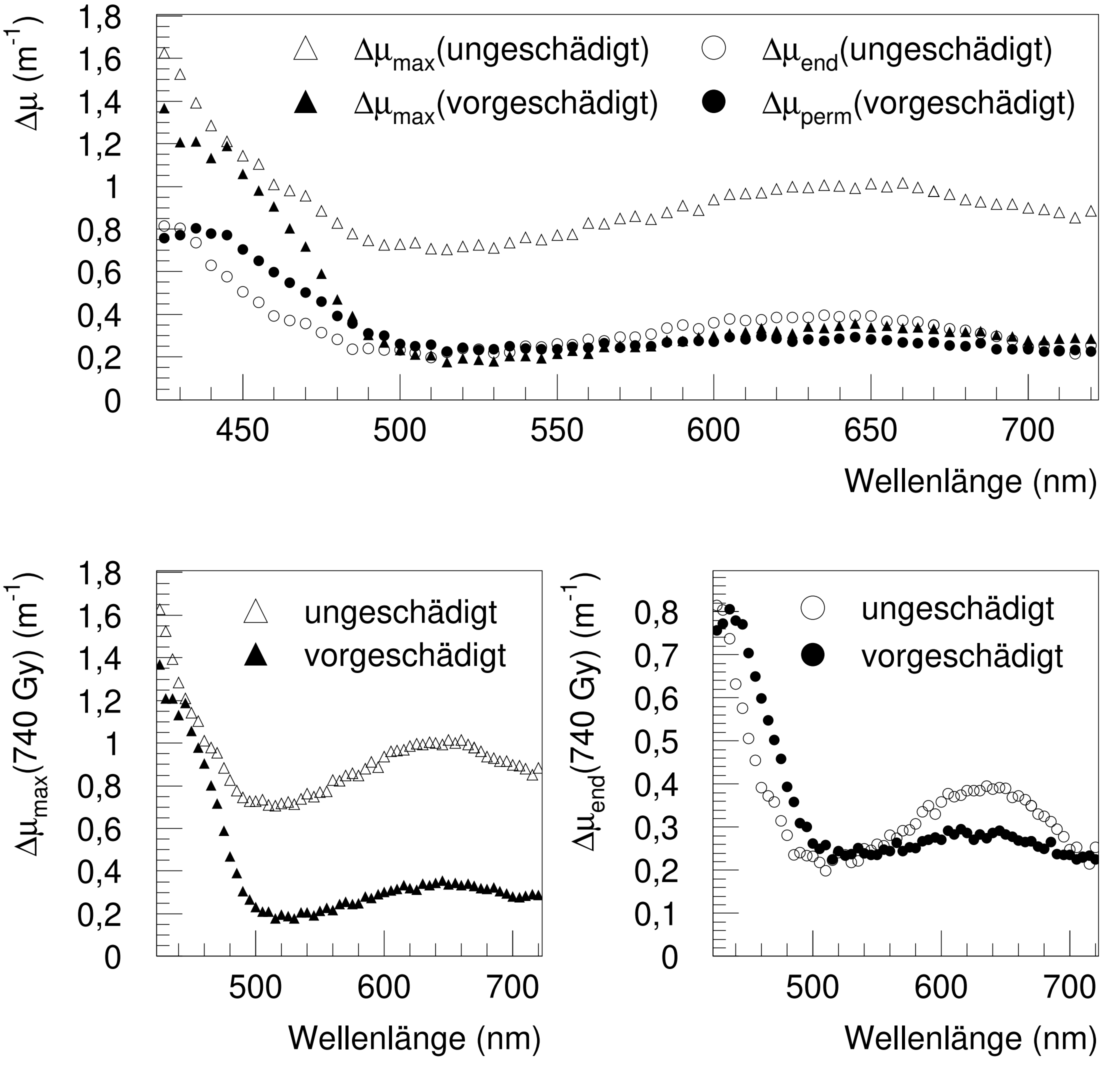

Abbildung 6.27: *Vergleich der Absorptionsspektren einer erstmalig bestrahlten Faser (offene Symbole) und einer vorgeschädigten (geschlossene Symbole). Oben: Maximal- und Endschäden. Die vorgeschädigte Faser bildet bei Wellenlängen über 500 nm keine ausheilenden Absorptionszentren, sondern nur permanente Absorption. Unten links: Vergleich der maximalen Absorption nach $D = 740$ Gy. Unten rechts: Gegenüberstellung der Endschäden nach 48 Stunden Ausheilung. Die vorgeschädigte Faser hat das Permanentschadensniveau bereits erreicht. Sie zeigt bei $\lambda \leq 500$ nm einen größeren Endschaden als die erstmalig bestrahlte Faser.*

der Bestrahlung annähernde Sättigung der Absorption erreicht. Nach der Bestrahlung zeigen sich allerdings in der vorgeschädigten Probe im Gegensatz zu der beobachteten starken Ausheilung in der ungeschädigten Faser keine Anzeichen eines Absorptionsrückgangs.

Die Absorptionsspektren der beiden Bestrahlungen sind in Abb. 6.27 dargestellt: Gezeigt sind die Spektren zum jeweiligen Ende der Bestrahlung und nach 48 Stunden Ausheilung. Oberhalb von 500 nm zeigen sich in der vorgeschädigten Faser auch direkt nach der Bestrahlung einzig permanente Absorptionszentren, eine Ausheilung wird nur für Wellenlängen bis 480 nm beobachtet (Abb. 6.27 oben). Wie bereits im Zeitverlauf für 455 nm ersichtlich, ist der Maximalschaden $\Delta\mu_{\max}$ der vorbehandelten Faser im blauen Wellenlängenbereich etwas kleiner als der der erstmals bestrahlten. Die Schädigung im Roten ist gravierend geringer (Abb. 6.27 unten links).

Ein Vergleich der Endschäden (Abb. 6.27 unten rechts) zeigt, dass die strahleninduzierte Absorption in der vorgeschädigten Faser auf Werte zurückgeht, die zwischen 440 und 500 nm zum Teil erheblich höher liegen als der der neuen Faser. Für Wellenlängen oberhalb von 500 nm ist ein Vergleich der Schäden nach 48 Stunden nicht aussagekräftig, da die Ausheilung der erstmalig bestrahlten Faser in diesem Bereich noch andauerte. Der später erreichte Permanentschaden (vgl. Abb. 6.24 oben) liegt in diesem Wellenlängenbereich in gleicher Größe wie in der vorgeschädigten Faser.

Das Ausheilverhalten der vorgeschädigten Faser entspricht insgesamt exakt demjenigen der in der erstmalig geschädigten Faser beobachteten kurzlebigen Absorption, die in dieser innerhalb von 5 Stunden ausheilte (vgl. Abb. 6.24 unten). Das in der vorher ungeschädigten Faser beobachtete langsam ausheilende Absorptionsspektrum wird in der Bestrahlung der vorbehandelten Faser nicht wieder gefunden.

Eine Ursache für dieses stark differierende Absorptionsverhalten von neuer und vorgeschädigter Faser könnte in zugesetzten Antioxidanzien bzw. sog. Antirads liegen, die einen Strahlenschaden der Faser im Fluoreszenzbereich vermeiden sollen (vgl. Abschnitt 3.1). Diese könnten sich bei der Bindung von Radikalen bzw. einem lokalen Energieabbau im Laufe einer Bestrahlung verbrauchen, so dass es bei ansteigender Dosis zu einem erhöhten Strahlenschaden kommt. Dieser wurde im Endschaden der Faser SCSF-81 im Bereich unter 500 nm beobachtet (vgl. Abb. 6.27 rechts).

Das gleichzeitig in der vorgeschädigten Faser nicht beobachtete Auftreten der langlebigen Absorption im roten Spektrum könnte somit als Absorptionsspektrum der Produkte einer Antioxidanzien-Zerstörung gedeutet werden. So fand z. B. [BPHM94] in Untersuchungen mit dem Antioxidanz AO-2 in einer Polyvinyltoluol (PVT)-Matrix bei Schädigung mit einer ^{60}Co-Quelle ein breites vollständig ausheilendes Absorptionsband im Roten, welches in der undotierten Grundmatrix nicht erschien.

Handelt es sich tatsächlich um diese Strahlenresistenz-Zusätze, die dieses gravierend andere Strahlenverhalten der vorgeschädigten Faser ausmachen, so ist es bemerkenswert, dass sie sich offensichtlich bereits nach der relativ geringen Dosis von 2,2 kGy vollständig verbraucht haben. Somit wäre bei größeren Dosen eine verstärkt ansteigende permanente Absorption im Fluoreszenzlichtbereich zu erwarten.

6.5 Polystyrol-Szintillator BCF-60

Der Farbstoff 3HF schiebt die Wellenlängen des Szintillationslichtes in den grünen Bereich. Die Faser gilt als sehr strahlenresistent, da in diesem Spektralbereich in der Grundmatrix Polystyrol keine optischen Absorptionen zu erwarten sind, aber auch 3HF selbst aufgrund seines aromatischen Charakters als strahlenhart bekannt ist.

Der gravierende Nachteil des Farbstoffes ist es, äußerst lichtempfindlich zu sein [Yag99, Lat01], auch gegenüber Tageslicht. Dabei kommt es zu einer Verminderung der Primärlichtausbeute, insbesondere aber zu einer starken Verkürzung der Abschwächlänge [Chu93, Lat01]. Da diese nachträglich in Erfahrung gebrachten extremen Eigenschaften eine sinnvolle Auswertung der Lichttransmissionsmessungen der Faser nicht zulassen, soll hier allein die qualitative Vorstellung der Messungen erfolgen.

Abb. 6.28 zeigt den zeitlichen Verlauf einer Schädigung, die durch eine dreifache Bestrahlung von je 760 Gy hervorgerufen wurde. Die Bestrahlungen wurden über je 20,25 Stunden mit jeweils 48 Stunden Ausheilzeit durchgeführt. Dargestellt ist die Absorptionsentwicklung bei den Wellenlängen 465 und 530 nm. Bei der kleineren Wellenlänge tritt der maximale Transmissionsschaden auf, die größere bildet das Fluoreszenzlichtmaximum.

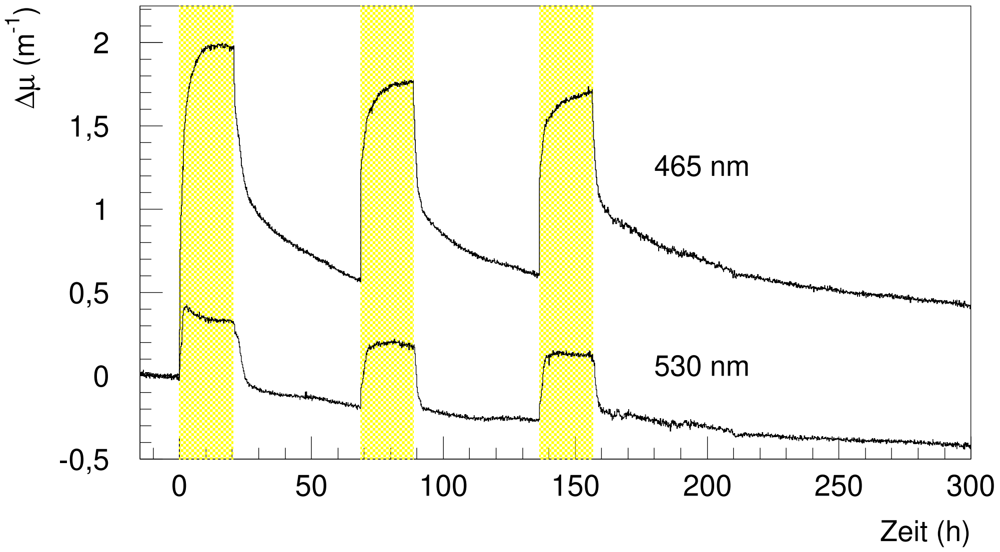

Abbildung 6.28: *Absorptionsentwicklung einer fraktionierten Bestrahlung von BCF-60 für* $\lambda = 465\,nm$ *(maximale Absorption) und 530 nm (Fluoreszenzlichtmaximum).* $\dot{D} = 37{,}9\,Gy/h$, $D = 3 \times 760\,Gy$. *Die Bestrahlungszeiträume sind hervorgehoben.*

Während der Bestrahlungen bildet sich bei beiden Wellenlängen eine kurzlebige Absorption aus. Sie sättigt bei 530 nm sehr schnell auf niedrigem Niveau. In der ersten Bestrahlung deutet sich hier eine Reduktion der Absorption bereits während der Schädigung an. Deutlich langsamer entwickelt sich eine Sättigung bei 465 nm bei einem größeren Schaden.

In der Ausheilung zeigt sich ein ähnliches Verhalten: Nach kurzer Zeit ist die Absorption im Fluoreszenzlichtbereich auf einen mit Null verträglichen Wert zurückgegangen, bei der kleinen Wellenlänge zeigt sich nach anfangs steilem Verlauf ein langsamerer Rückgang der strahleninduzierten Absorption, der bis zum Beginn der anschließenden Bestrahlung noch nicht abgeschlossen ist. In den weiteren Bestrahlungen ist die Form der zeitlichen Schädigungsverläufe vergleichbar, es treten offensichtlich hauptsächlich reversible Prozesse auf.

Die Unsicherheit der Messungen ist jedoch groß. Deutlich ist in den Zeitverläufen eine sich über den gesamten Messzeitraum erstreckende Abnahme des Absorptionskoeffizienten zu erkennen, die sich durch eine Transmissionsverschlechterung in der Referenzfaser erklären lässt[11]. Eine quantitative Auswertung für den interessierenden Bereich der Faserfluoreszenz ist so unmöglich.

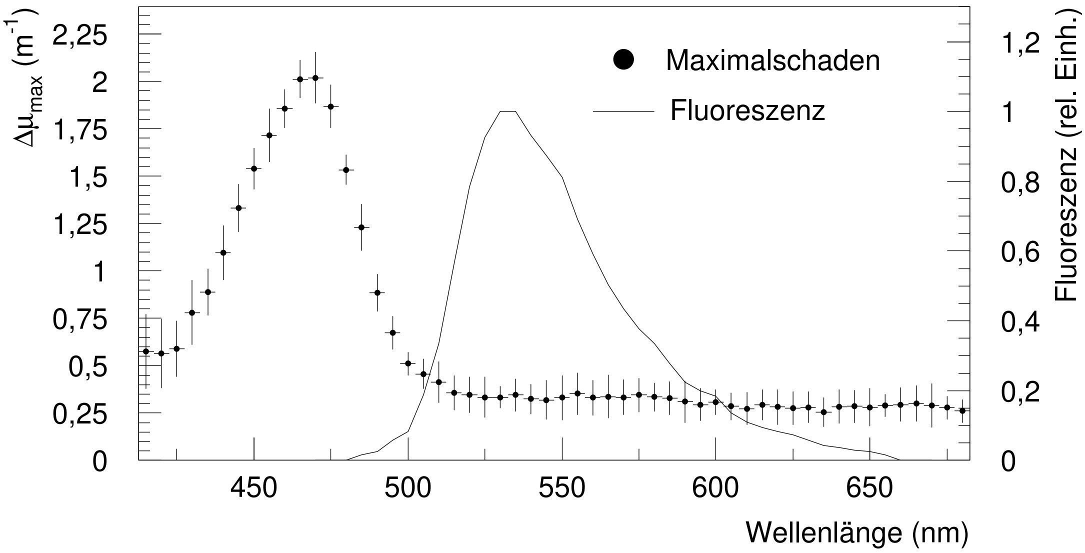

Abbildung 6.29: *Spektrale Verteilung des maximalen Schadens der ersten Bestrahlung aus Abb. 6.28. Er ergibt sich nach einer Bestrahlungsdauer von ca. 14 Stunden bzw. 530 Gy Röntgenbestrahlung. Ein starker Schaden baut sich nur neben dem Fluoreszenzlichtspektrum auf.*

Die erste der drei Bestrahlungen ist von der Unsicherheit am wenigsten betroffen. Das Verhalten der Faser kann hier noch qualitativ beschrieben werden. Abb. 6.29 zeigt die spektrale Verteilung des Maximalschadens während der ersten Bestrahlung. Ein deutlicher Schaden ergibt sich um 465–470 nm, das Absorptionsband fällt zu größeren Wellenlängen hin steil ab, so dass sich über das gesamte Emissionsspektrum

---

[11] Ein Rückgang der Transmission durch den Einfluss des Messlichtes hat in beiden Fasern stattgefunden. Da die Referenzfaser stärker beleuchtet war, ist hier der Effekt ausgeprägter.

der Faser von 500 bis 650 nm nur ein gleichverteilter Schaden von $\Delta\mu_{\mathrm{max}} \approx 0{,}35\,\mathrm{m}^{-1}$ ergibt. Die strahleninduzierte Absorption zeigt bei allen beobachteten Wellenlängen deutliche Ausheilerscheinungen. Ein Rückgang der Absorption auf Null kann aufgrund der schlechten Gesamtstabilität der Faser nicht nachgewiesen werden, deutet sich aber zumindest für das Fluoreszenzlichtspektrum an.

Ein vom Polystyrol stammender permanenter Strahlenschaden bei kleinen Wellenlängen ist ebensowenig erkennbar wie ein Permanentschaden im Fluoreszenzlichtbereich. Die Rückkehr der induzierten Absorption jeder Bestrahlung auf dasselbe Niveau wie in den vorangegangenen Schädigungen kann ebenfalls nur vermutet werden. Die Entwicklung des aufgenommenen Szintillationslichtes lässt keine schlüssigen Aussagen zu, da ein beobachteter Rückgang der Intensität nicht ursächlich getrennt werden kann: Der generelle Rückgang der Lichtintensität am Photomultiplier durch die vom Messlicht hervorgerufene Schädigung kann nicht unterschieden werden von einem Transmissionsrückgang durch die Röntgenstrahlung oder einer Farbstoffzerstörung.

Für eine große Schädigung kann die Kinetik der Absorptionszentren mit einem Ansatz zweiter Ordnung beschrieben werden, der um eine konstante negative Steigung über den Beobachtungszeitraum erweitert ist. Abb. 6.30 zeigt eine gute Beschreibung des ersten Ausheilzeitraums mit dieser Funktion mit größeren Schwankungen des Signals zu Beginn der Ausheilzeit. Eine Anpassung an die Absorptionsentwicklung bei größeren Wellenlängen ist nicht möglich.

Die Instabilität in dieser Art Messsystem macht Aussagen über die 3HF-Faser

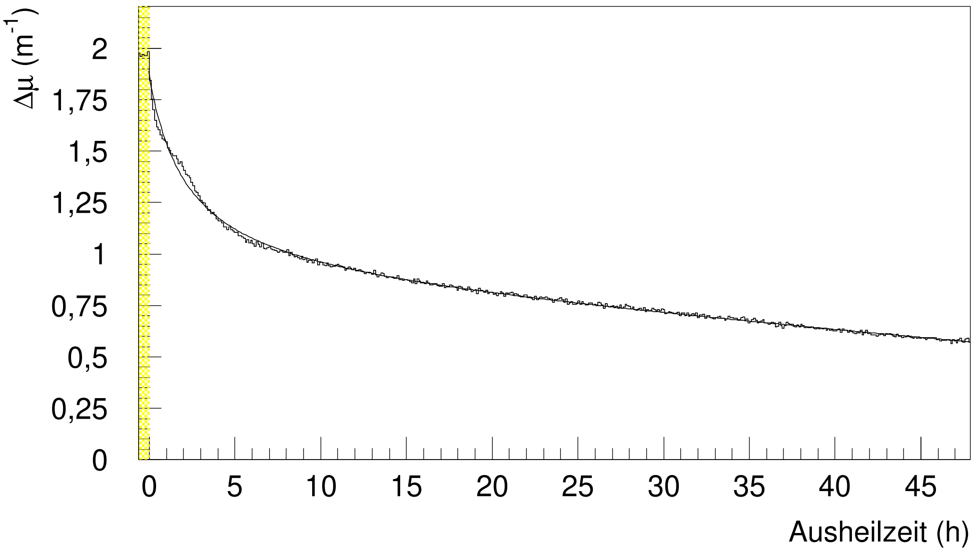

Abbildung 6.30: *Anpassung einer Funktion zweiter Ordnung an die Ausheilungsphase der ersten Bestrahlung.* $\lambda = 465\,nm$, *Ausheilparameter* $\tau = 2{,}2\,h$, *überlagerter konstanter Abfall:* $-6{,}6 \cdot 10^{-3}\,m^{-1}h^{-1}$.

BCF-60 vage. In Transmissionsexperimenten darf die Lichtmenge, der die Faser ausgesetzt ist, in keinem Fall groß sein. Vom Hersteller Kuraray[12] wird sowohl Präparation als auch Experiment unter Gelblicht dringend empfohlen.

Aufzuzeigen ist, dass die Faser eine starke Absorption nur neben ihrem Emissionsspektrum aufbaut. Diese gehorcht in der Zeitentwicklung einer Kinetik zweiter Ordnung. Nur für große Schädigungen ist ein über 500 nm reichendes Absorptionsband zu erwarten. Im Emissionsbereich bildet sich gleichverteilt eine kleine, nach der Schädigung schnell ausheilende Absorption aus. Ein Permanentschaden konnte nicht nachgewiesen werden.

6.6 PMMA-Lichtleiter FL-51

6.6.1 Absorptionsentwicklung mit gelöstem Sauerstoff

Polymethylmethacrylat (PMMA) enthält im Gegensatz zu Polystyrol keine C=C-Doppelbindungen, die leicht anregbar sind und zu einer Szintillation führen können. Es szintilliert nicht und absorbiert damit auch nicht wie Polystyrol Licht im nahen UV-Bereich. Eine starke Absorption in PMMA setzt erst unterhalb von 260–290 nm ein. Eine 1 m lange Faser kann so mit dem vorhandenen Experiment bis hinunter zu Wellenlängen von 340 nm untersucht werden, wenn die strahleninduzierte Absorption nicht zu groß wird.

PMMA lässt nur sehr wenig Sauerstoffdiffusion zu. Eine Bildung von Peroxidradikalen nach dem in Abschnitt 3.3.2 (S. 19 ff.) vorgestellten Schema kann in kurzen Zeiten nur mit bereits im Polymer befindlichen Sauerstoffmolekülen stattfinden. Bei Bestrahlungen mit geringen Dosen ist daher der in der Faser gelöste Sauerstoff für Oxidationsreaktionen in der Folge von Radikalbildungen verantwortlich.

Abb. 6.31 zeigt das Ergebnis der Bestrahlung einer FL-51-Faser mit einer Gesamtdosis von 255 Gy, die über fast 6 Stunden verabreicht wurde. Dargestellt ist der Zeitverlauf für Wellenlängen im UV-Bereich. Im Sichtbaren zeigt die Faser bei dieser Dosis kaum Schäden. Für 340 nm zeigt sich ein ausheilender Anteil, der bei 370 nm verschwunden ist. Ab hier nimmt die Faser nur noch einen Permanentschaden an, der sich linear mit der Dosis entwickelt und zu größeren Wellenlängen hin geringer wird.

Die bei kleinen Wellenlängen vorhandene Ausheilung lässt sich im Zeitverlauf mit einem Modell zweiter Ordnung beschreiben. Da diese Absorption sich stark in der ersten Bestrahlungsphase entwickelt, liegt wie beim PS die Vermutung nahe, dass hier die Absorption der primär entstehenden Radikale oder von sehr schnell entstehenden Zwischenprodukten zu sehen ist, die innerhalb von Stunden weiterreagieren. Dies könnten z. B. die unter Einfluss des gelösten Sauerstoffs entstehenden Peroxidradikale sein. Eine genauere Betrachtung folgt in Kap. 6.6.4.

---

[12] Kuraray stellt die hier nicht untersuchte Faser SCSF-3HF aus Polystyrol mit demselben Farbstoff her.

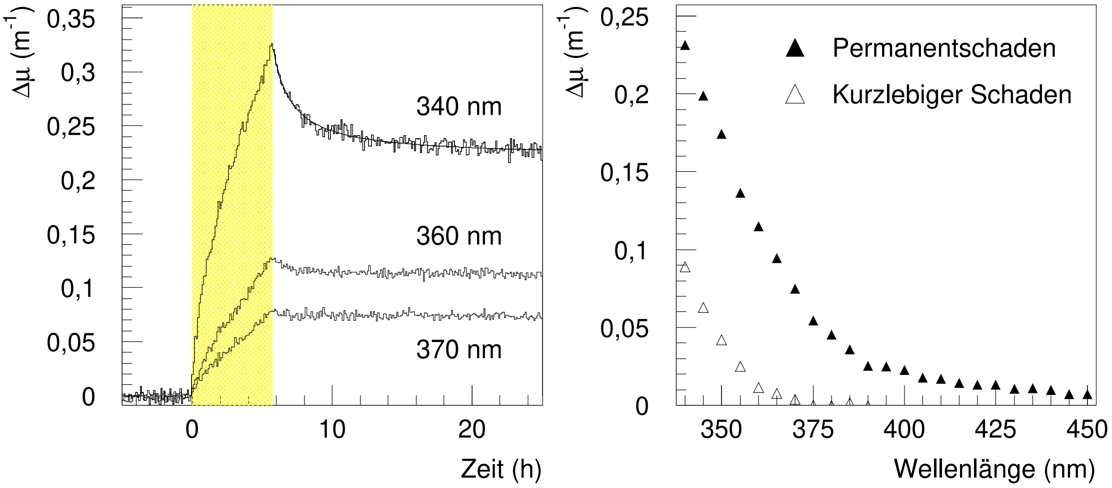

Abbildung 6.31: *Strahleninduzierte Absorption einer Faser FL-51.* $\dot{D} = 43$ *Gy/h,* $D = 255$ *Gy. Links: Zeitverlauf für 3 Wellenlängen. Der Bestrahlungszeitraum ist hervorgehoben. Für die Ausheilung des kurzlebigen Anteils ist bei* $\lambda = 340$ *nm an den Abfall eine Funktion zweiter Ordnung angepasst. Ausheilparameter nach Gl. 4.20, S. 28:* $\tau = 1{,}33$ *h. Rechts: Spektren des permanenten sowie des ausheilenden Schadensanteils.*

6.6.2 Sauerstoffverbrauch

Eine weitere Bestrahlung der Faser führte zur Sauerstofffreiheit im Polymer. Die Diffusionsgeschwindigkeit von Sauerstoff in PMMA ist um ein bis zwei Größenordnungen kleiner als bei Polystyrol. Für die hier auftretenden Schädigungs- und Ausheilvorgänge müssen zusätzlich die Begrenzung der Diffusion durch das Cladding[13] sowie der Verbrauch des Sauerstoffs während der Diffusion durch chemische Reaktionen zur Ausheilung eines örtlichen Strahlenschadens berücksichtigt werden.

Eine Bestimmung der Dosis, bei der der gelöste Sauerstoff verbraucht ist, erfolgte aus dem zeitlichen Verlauf des strahleninduzierten Schadens unter der Annahme, dass in kurzen Zeiten kein Sauerstoff nachdiffundiert.

Abb. 6.32 zeigt links den optischen Absorptionsverlauf in FL-51 für $\lambda = 380$ nm. Am Punkt des vollständigen Sauerstoffverbrauchs fängt die Absorption der Faser stärker an zu steigen. Im kurzwelligen Bereich ist die Steigung der Absorptionszunahme um den Faktor 9–12 größer als mit Sauerstoff in der Faser. Der Übergang zum steileren Anstieg geht dabei weniger abrupt vor sich als in Polystyrol. Der Punkt der Sauerstofffreiheit wurde nach einer Gesamtbestrahlungszeit von 15,5 Stunden gefunden, was mit der Annahme einer konstanten Dosisleistung der Röntgenröhre zu einer Dosis von 665±35 Gy führt. Diese liegt somit um einen Faktor 4–4,5 niedriger als bei der Polystyrolfaser (vgl. Abschnitt 6.2.1).

---

[13] Wahrscheinlich besteht das Fluoropolymer-Cladding aus PMMA-Derivaten, so dass seine Diffusionseigenschaften denen im Kern ähnlich sind.

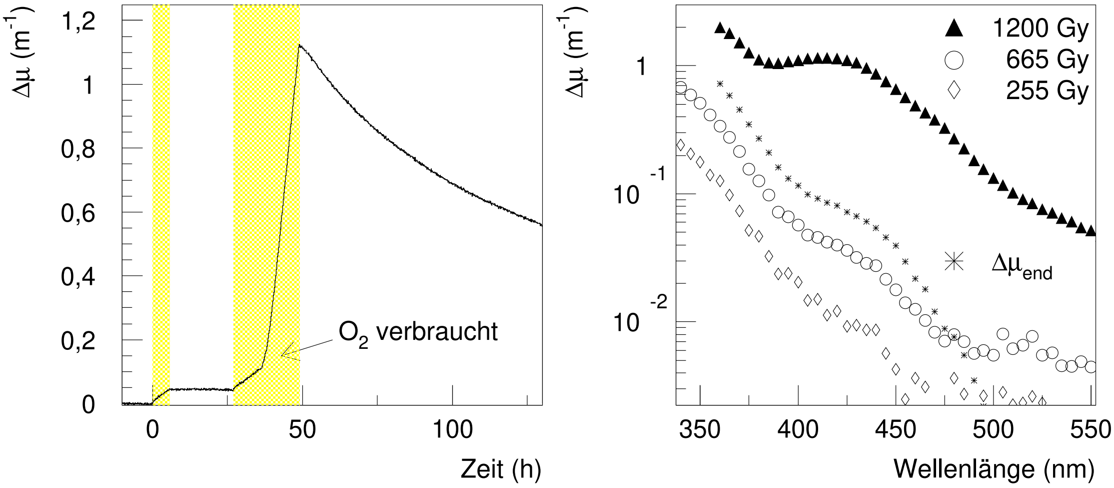

Abbildung 6.32: *Zweifachbestrahlung einer Faser FL-51.* $\dot{D} = 43\,Gy/h$, $D_{ges} = 1200\,Gy$. *Links: Zeitverlauf für* $\lambda = 380\,nm$. *Die Bestrahlungszeiträume (6 h und 22 h) sind hervorgehoben. Deutlich ist der Knick am Punkt des vollständigen Sauerstoffverbrauchs im Schadensanstieg während der zweiten Bestrahlung zu sehen. Rechts: Spektren der Absorption zu vier Zeiten: nach der ersten Bestrahlung (255 Gy), am Punkt der Sauerstofffreiheit (665 Gy) sowie zum Maximalschaden (1200 Gy), zusätzlich der verbleibende Endschaden* $\Delta\mu_{end}$. *Die Ausheilung war noch nicht abgeschlossen.*

Eine Unsicherheit tritt dabei durch die Annahme auf, dass von Beginn der ersten Bestrahlung an bis zum Zeitpunkt des vollständigen Sauerstoffverbrauchs nur unwesentlich O_2 in die Faser eindiffundiert. Da sich dieser Zeitraum über insgesamt ca. 35 Stunden erstreckt, hat eine Diffusion in die Faser stattgefunden. Im Extremfall kann die erste Bestrahlung als ausgeheilt betrachtet werden. Die Dosis der Sauerstofffreiheit wäre dann allein auf die zweite Bestrahlung zurückzuführen und fiele so auf ca. 410 Gy.

Rechts in Abb. 6.32 sind die Spektren der Schäden ersichtlich, die sich nach der ersten Bestrahlung von 255 Gy, der Bestrahlung bis zur Dosis der Sauerstofffreiheit von 665 Gy (Knick im Zeitverlauf der zweiten Bestrahlung) und bei der Maximaldosis eingestellt haben. Zum Vergleich ist zusätzlich der am Ende der Messung verbleibende Schaden abgebildet. Die Ausheilung war zum Beobachtungsende jedoch noch nicht abgeschlossen. Für Wellenlängen unter 360 nm ist die Faser bei größeren Schäden undurchlässig, weshalb eine Darstellung des Maximalschadens für 1200 Gy und des Endschadens nicht möglich ist. Das Schadensspektrum ändert sich bei Anwesenheit von Sauerstoff nicht, der Schaden bei 665 Gy ist über den gesamten Spektralbereich um den Faktor 2,9±0,2 größer als bei 255 Gy. Dies lässt bei einem Dosisverhältnis von $665\,Gy/255\,Gy = 2{,}6$ auf einen linear ansteigenden Schaden schließen.

Die spektrale Verteilung des optischen Schadens ändert sich dann zum Maximalschaden bei 1200 Gy hin (Abb. 6.32) deutlich. Die Absorptionszentren, die ohne O_2 gebildet werden, sind andere als mit gelöstem Sauerstoff in der Faser.

Verdeutlicht wird der Unterschied der Absorptionszentren, die mit und ohne Sauerstoff auftreten, im Vergleich der Steigungen der Absorptionsentwicklungen zu Bestrahlungsbeginn und nach dem Sauerstoffverbrauch. Sie repräsentieren die sich im jeweiligen Umfeld entwickelnden Absorptionszentren und sind in Abb. 6.33 dargestellt.

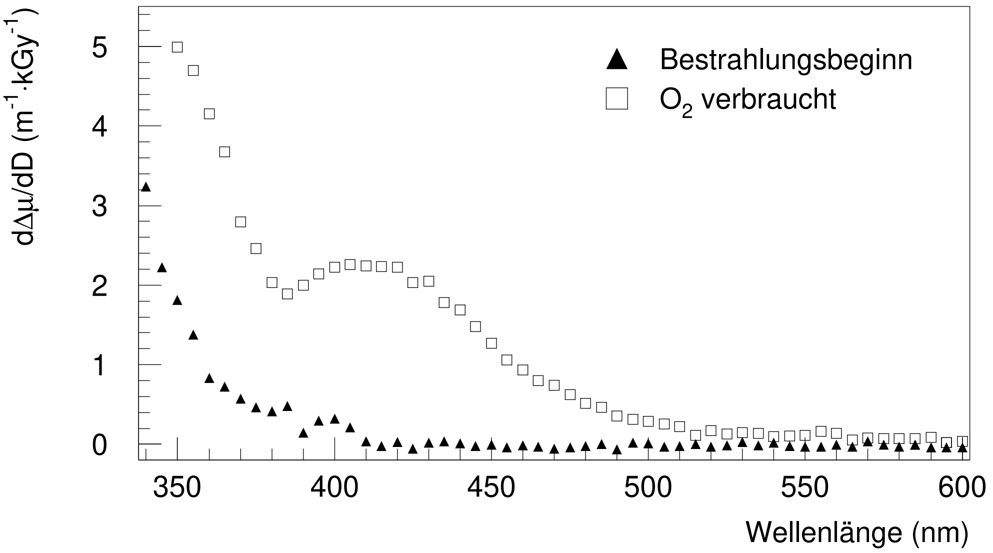

Abbildung 6.33: *Spektrum des Absorptionsanstiegs in FL-51 zu Beginn der ersten Bestrahlung und nach dem vollständigen Sauerstoffverbrauch. Die sich entwickelnden Spektren unterscheiden sich.* $\dot{D} = 43\,Gy/h$, $D_{ges} = 1200\,Gy$.

Im Gegensatz zu Polystyrol (vgl. Abschnitt 6.2.1, S. 46 ff.) stimmen die Formen der Absorptionsspektren, welche direkt zu Beginn der Bestrahlung und nach dem Punkt des vollständigen Sauerstoffverbrauchs gebildet werden, nicht überein. Der Anstieg in den ersten 30 Minuten der Bestrahlung ist stark geprägt von der Entwicklung der kurzlebigen Absorption (vgl. ausheilender Anteil in Abb. 6.31). Ohne Sauerstoff entwickelt sich eine breite Absorption, die zu kleinen Wellenlängen hin stärker wird und ein zusätzliches Maximum um 410–420 nm bildet[14]. Sie ist aus Hochdosisbestrahlungen von PMMA wohlbekannt und wird auf das PMMA-Radikal zurückgeführt. Diese Absorption ist unter Sauerstoff aufgrund der sehr wenigen primären PMMA-Radikale, die offensichtlich sofort zu Peroxiden weiterreagieren können, nicht auszumachen.

Die Absorptionszentren, welche mit bzw. ohne Sauerstoff gebildet werden, können somit nicht identisch sein. Die den kurzlebigen Schaden ausmachenden Zentren sind

---

[14] Im Anstieg bei Sauerstoffmangel deutet sich eine weitere Absorption um 555 nm an. Sie ist sehr schwach entwickelt; für sie ist keine weitere Auswertung möglich.

demnach nicht von PMMA-Radikalen hervorgerufen, da diese unter Sauerstoffabschluss stabil bleiben. Eine weitere Diskussion folgt in Kap. 6.6.4.

6.6.3 Ausheilung nach Sauerstofffreiheit

Die Ausheilung des optischen Strahlenschadens in PMMA nach vollständigem Sauerstoffverbrauch kann auf zwei Wegen ablaufen:

- Sauerstoff diffundiert in die Faser ein und die PMMA-Radikale oxidieren zu Peroxiden. Dabei kann ein primäres Radikal, wie in Abschnitt 3.3.2 beschrieben, ein O_2-Molekül binden (Gl. 3.5, S. 20), dieses aber auch bei Weiterreaktion wieder freisetzen (Gl. 3.12, S. 20), so dass es weitere Radikale oxidieren kann. Begrenzt wird dieser Vorgang durch die Diffusionsfähigkeit des Sauerstoffs im Polymer, wenn die radikalischen Stellen als relativ unbeweglich betrachtet werden. Ausheilungsvorgänge dieser Art sind in Platten und Fasern beobachtet worden, z. B. in [Lad97]. Hier wurde der Rückgang des ESR-Signals in einer PMMA-Probe GS 218 der Firma Röhm von 3,6 mm Durchmesser verfolgt. Nach ca. 13 kGy ^{60}Co-Bestrahlung dauerte die Ausheilung deutlich länger als 250 Tage.
  Ein Diffusionsmodell für runde Proben konnte in [Lad97] die zeitliche Entwicklung der Radikalmenge in der Probe für kurze bis mittlere Zeiten gut beschreiben, zum Ende hin verlief die Ausheilung langsamer.
- Nach einem Prozess zweiter Ordnung rekombinieren unabhängig von Sauerstoff zwei sich örtlich nahe Radikale (Gl. 3.10). Dieser Prozess sollte unter Sauerstoffabwesenheit sehr langsam vor sich gehen, da die Makroradikale im Polymer nur eine sehr geringe Beweglichkeit aufweisen.

Beide Prozesse werden in der Regel nebeneinander ablaufen und abhängig von den äußeren Bedingungen miteinander konkurrieren.

Für die Anwendung eines Diffusionsmodells dürfen die Reaktionszeiten von Radikal zu Peroxid und weiter zu Hydroperoxiden nur eine untergeordnete Rolle spielen. Diese Bedingung ist erfüllt: Die Geschwindigkeit dieser Reaktionen ist sehr groß gegenüber der Diffusionsgeschwindigkeit von Sauerstoff in PMMA und nur die Diffusion ist der begrenzende Faktor für die Ausheilung. Die Anpassung eines Diffusionsmodells für runde Probengeometrien aus [Lad97] konnte den Zeitverlauf der Ausheilung in FL-51 jedoch nicht beschreiben.

Abb. 6.34 zeigt beispielhaft für drei Wellenlängen die Anpassung einer Funktion zweiter Ordnung nach Gl. 4.20 an die Ausheilungsphase. Die Übereinstimmung mit dem Absorptionsrückgang ist sehr gut. Die zeitliche Entwicklung lässt sich für das Spektrum der induzierten Absorption konsistent mit einem Ausheilparameter von $\tau = 100\,\mathrm{h}$ beschreiben. Die induzierte Absorption heilt nach dieser Anpassung allerdings auf einen Schaden unter Null aus, dargestellt als Permanentschadensparameter $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}$ (Abb. 6.34 u.r.). Dies kann zum einen mit einer Instabilität der Messung erklärt werden, die bei Wellenlängen beobachtet wurde, an denen keine Schädigung

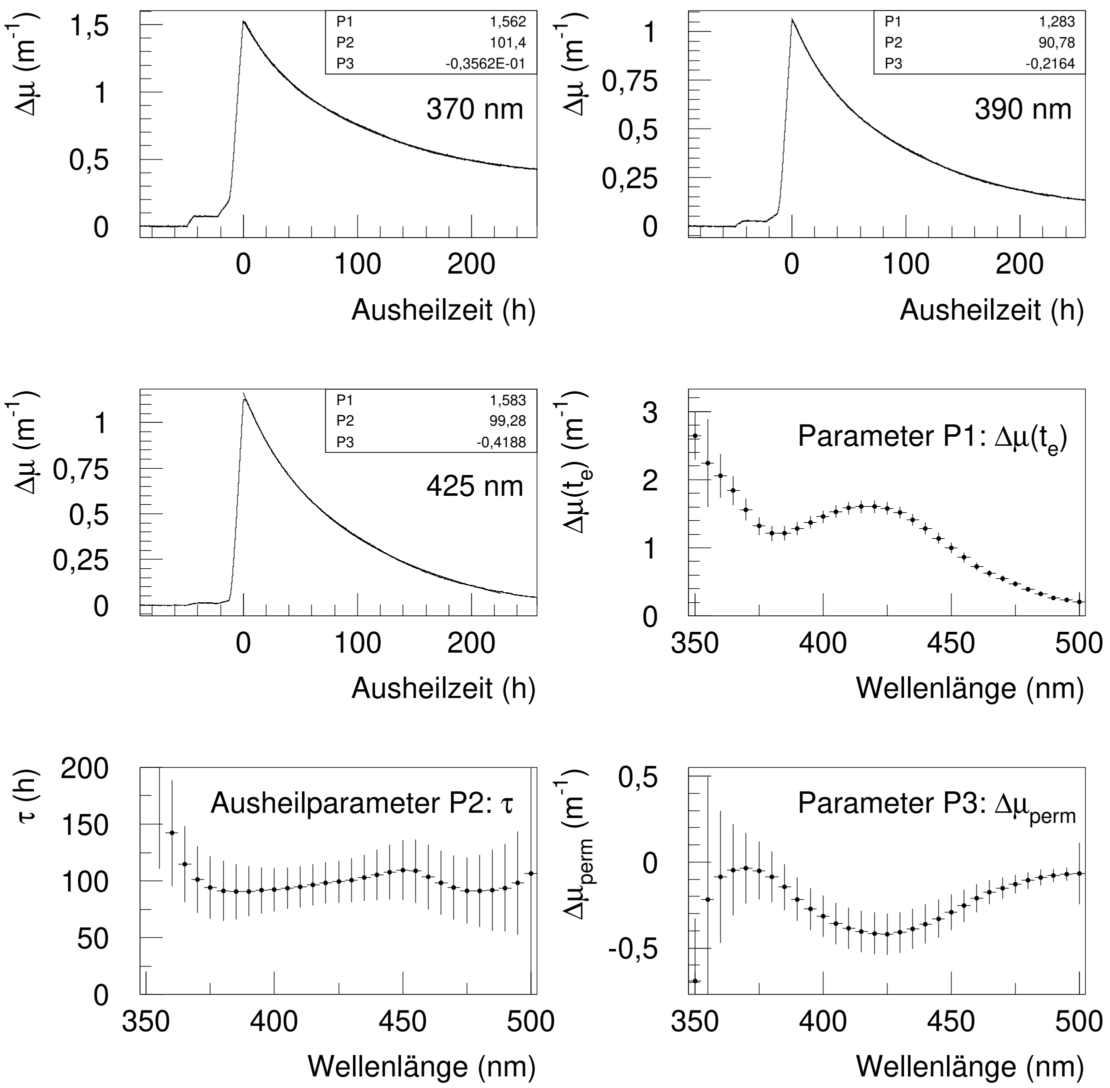

Abbildung 6.34: *Zweifachbestrahlung einer ein Meter langen Faser FL-51.* $\dot{D} = 43\,Gy/h$, $D_{ges} = 1200\,Gy$. *Die Anpassung einer Funktion zweiter Ordnung an die Ausheilung ist für drei Wellenlängen abgebildet. Die entsprechenden Parameter nach Gl. 4.20, S. 28 sind in weiteren drei Teilbildern dargestellt.*

auftrat. Diese sollte jedoch keine vom Schaden abhängige spektrale Verteilung aufweisen. Zum anderen kann anhand dieses negativen Endschadens aber auch der Einfluss des zweiten Reaktionskanals der Ausheilung durch Sauerstoffdiffusion abgeschätzt werden, die in der Anpassung nicht berücksichtigt wird. Demnach wäre der Ausheilung durch Rekombination eine diffusionsbestimmte Abnahme der Absorption überlagert. Eine lineare erste Näherung dieses Diffusionsterms wäre spekulativ. Der Anteil der Ausheilung über Oxidations-Reaktionskanäle kann nur aufgrund des Endschadens der Anpassung mit etwa 30 % abgeschätzt werden.

6.6.4 Vergleich mit ESR-Signal

Das zeitliche Verhalten der FL-51-Faser wurde mit Daten aus ESR-Messungen verglichen. Parallel zu einer optischen Ausheilung der Faser wurde die Entwicklung der Radikalkonzentration in Faserstücken desselben Typs und Durchmessers beobachtet, um die Natur der optischen Absorption zu erfassen. Das PMMA-Radikal hinterlässt im ESR-Signal ein charakteristisches 9-Linien-Spektrum (vgl. Abb. 5.7, S. 39), während ein Peroxidradikal als Singulett zu sehen ist (s. Abb. 6.35). Aufgrund einer mangelhaften Signalstärke war es jedoch unmöglich, die bestrahlten FL-51-Proben im ESR-Spektrometer auszuwerten.

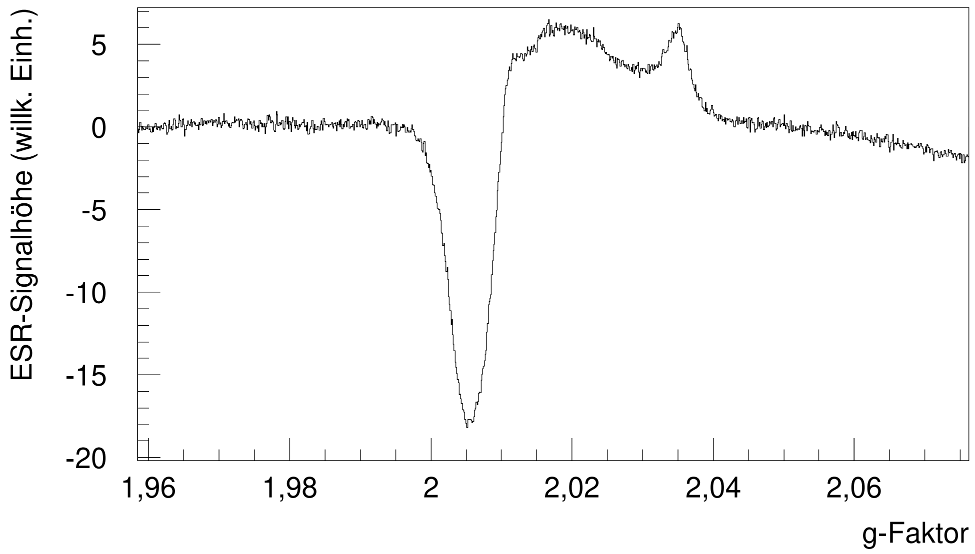

Abbildung 6.35: *ESR-Signal des PMMA-Peroxidradikals einer mit 200 Gy Röntgenquanten bestrahlten GS 218-Probe [Bod]. Die Auftragung erfolgt gegen den g-Faktor.*

Eine ESR-Auswertung fand jedoch für PMMA-Proben des Typs GS 218 der Firma Röhm statt [Bod]. Die Proben wurden mit Dosen von 100, 160, 200, 700 und 900 Gy mit einer Dosisleistung von 43 Gy/h bestrahlt. Dabei wurde direkt nach der Bestrahlung bei den drei kleinen Dosen sehr dominant das ESR-Spektrum des Peroxids beobachtet, welches bei den höheren Dosen ab 700 Gy vom 9-Linien-Spektrum des PMMA abgelöst wurde. Entsprechend ist ein vollständiger Verbrauch des gelösten Sauerstoffs in diesen Proben ebenfalls bei Bestrahlungsdosen zwischen 200 und 700 Gy zu suchen.

Zusätzlich wurden für diese Proben die zeitlichen Entwicklungen der Radikalkonzentrationen nach der Bestrahlung erfasst, indem in Zyklen von einer Stunde ESR-Spektren aufgenommen wurden. Der Rückgang des Peroxidsignals im ESR-Spektrum wurde anhand der Signalhöhe verfolgt [Bod].

Die Bestrahlungsbedingungen der ESR-untersuchten GS 218-Proben und der per

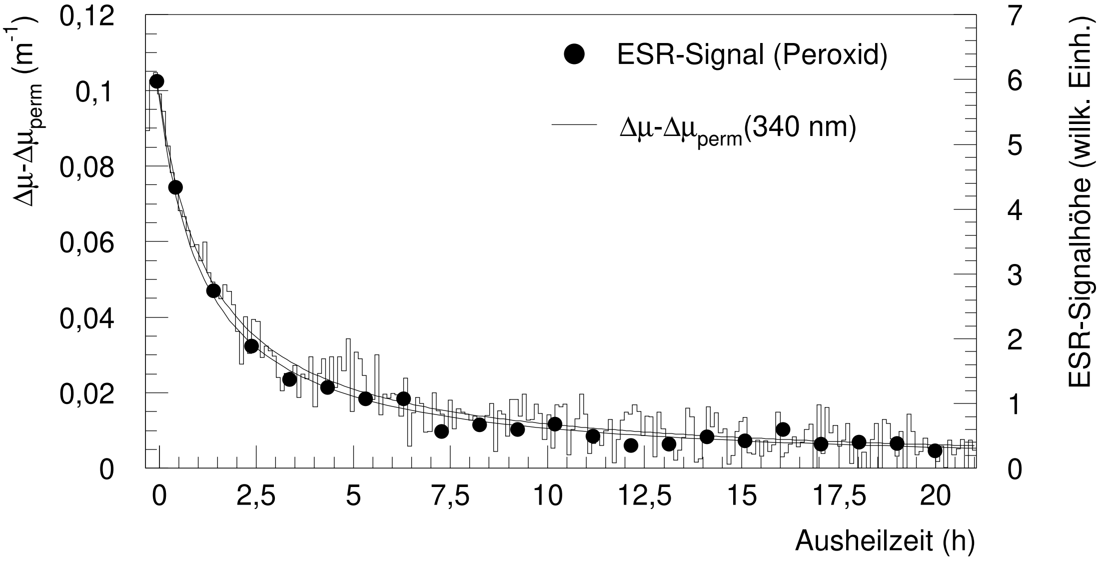

Abbildung 6.36: *Vergleich des zeitlichen Abklingens der kurzlebigen Absorption bei* $\lambda = 340\,nm$ *nach einer Bestrahlung mit* $D = 255\,Gy$, $\dot{D} = 43\,Gy/h$ *(vgl. Abb. 6.31) und des ESR-Signals des PMMA-Peroxidradikals nach der Bestrahlung mit* $D = 200\,Gy$, $\dot{D} = 43\,Gy/h$. *Zusätzlich abgebildet sind die Anpassungsfunktionen nach einem Prozess zweiter Ordnung. Die Ausheilparameter liegen mit* $\tau_{\Delta\mu} = 1{,}33\,h$ *und* $\tau_{ESR} = 1{,}2\,h$ *in gleicher Größe.*

optischer Transmission untersuchten FL-51-Probe waren identisch. Die Ausheilungsvorgänge der 200-Gy-ESR-Bestrahlung und der Transmissionsmessung mit 255 Gy (vgl. Abb. 6.31) wurden einander gegenübergestellt.

In Abb. 6.36 sind die Ausheilung der kurzlebigen Absorption und der Rückgang der Peroxid-Singuletthöhe gegen die Zeit aufgetragen. Beide Ausheilvorgänge lassen sich mit einem Prozess zweiter Ordnung nach Gl. 4.16 beschreiben. Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Abklingzeiten und der zeitlichen Verläufe der Peroxidradikal-Ausheilung im ESR-Signal ($\tau_{ESR} = 1{,}2$ h) und der Ausheilung der kurzlebigen optischen Absorption mit gelöstem Sauerstoff in der Faser ($\tau_{\Delta\mu} = 1{,}33$ h). Sie lässt darauf schließen, dass es sich bei den Zentren, die die kurzlebige Absorption im UV-Bereich hervorrufen (vgl. Abb. 6.31), um Peroxidradikale handeln muss, die während der Bestrahlung sehr schnell in Sekundärprozessen im PMMA entstehen.

6.7 Vergleich der untersuchten Fasern

6.7.1 Vergleich der Lichtleitfasern

Die beiden Lichtleitfasern BCF-98 und FL-51 lassen mit der Einschränkung, dass unbekannte Zusätze enthalten sein können, einen Vergleich der Abläufe in Polystyrol und PMMA zu.

Die Ergebnisse der optischen Untersuchungen können dabei mit den in Kap. 3.3.2 (S. 19 ff.) vorgestellten allgemeinen Reaktionen beschrieben werden:

In beiden Polymeren findet eine primäre Schädigung in Form von Radikalbildung nach Gl. 3.4 statt (Initiation). Diese Radikale R• zeigen eine sehr starke optische Absorption, die sich vom UV-Bereich ausgehend bis ins blaue sichtbare Spektrum erstrecken kann. Sie sind unter Sauerstoffabschluss sehr langlebig, ihre Absorption zeigt sich insbesondere in den Experimenten, die zur Sauerstofffreiheit in der Faser führten (vgl. Abb. 6.1, S. 47 und Abb. 6.32, S. 91).

Die entstehenden Radikale können unter Sauerstoffeinfluss nach Gl. 3.5 zu Peroxiden $RO_2\bullet$ weiterreagieren, über Austauschreaktionen können die radikalischen Stellen weitergegeben werden (Propagation bzw. Migration). In der Reaktionskette stellt sich bei ausreichender Versorgung mit Sauerstoff ein Gleichgewicht zwischen primär entstehenden Radikalen R• und Peroxiden $RO_2\bullet$ ein.

In beiden Polymeren machen sich diese Zentren bei Sauerstoffanwesenheit durch eine kurzlebige Absorption bemerkbar, die innerhalb von Stunden ausheilt (vgl. Abb. 6.3, S. 51 und Abb. 6.31, S. 90). Dabei ist in den optischen Messungen in Polystyrol allein das primär entstehende Benzylradikal sichtbar, das Peroxid wird nicht gesehen[15]. In PMMA hingegen ist sowohl in optischen als auch in ESR-Untersuchungen nur das Peroxid-Radikal nachweisbar.

Die Moleküle reagieren in der Kette $R\bullet \rightarrow RO_2\bullet \rightarrow$ *Folgeprodukt*. Im PS zeigt das primär erzeugte Radikal R• eine hohe Beständigkeit, während in PMMA das nach einer sehr schnellen Oxidation entstehende Peroxid $RO_2\bullet$ eine so lange Lebenszeit aufweist, dass es nachgewiesen werden kann. In beiden Fällen liegt die Lebensdauer der jeweils nachgewiesenen Verbindungen im Bereich von Stunden.

6.7.2 Permanentschaden in Lichtleiter und Szintillatoren

In typischen Experimenten mit Untergrundstrahlung geringer Dosisleistung geht man i. Allg. davon aus, dass ausheilende Absorptionszentren sich nicht in großen Mengen ausbilden können, sondern sich ein sehr niedriges Sättigungsniveau findet. Damit würde zu jeder Zeit im Experiment ein der applizierten Dosis entsprechender Permanentschaden in der Faser vorliegen. Diese Annahme wird unterstützt durch die Beobachtung, dass ausheilende Absorptionszentren in der Regel keine sehr lange Lebensdauer haben, insbesondere wenn sie mit in der Faser enthaltenem Sauerstoff weiterreagieren können.

Ein Vergleich der PS-basierten Fasern soll zeigen, ob der Zusatz von Farbstoffen eine Verschlechterung der optischen Eigenschaften nach sich zieht. Nicht in den Vergleich einbezogen wurde die PMMA-Faser sowie die Faser BCF-60, die aufgrund der optischen Instabilität nur qualitative Schlüsse zulässt. Für die Faser SCSF-81(Y7) liegen keine Daten für den zum Vergleich herangezogenen Dosisbereich vor.

Der Vergleich der Permanentschäden ist in Abb. 6.37 ersichtlich: Die blaues Licht

---

[15] In ESR-Untersuchungen von PS-Fasern mit gelöstem Sauerstoff war die Signalstärke für eine Auswertung zu schwach.

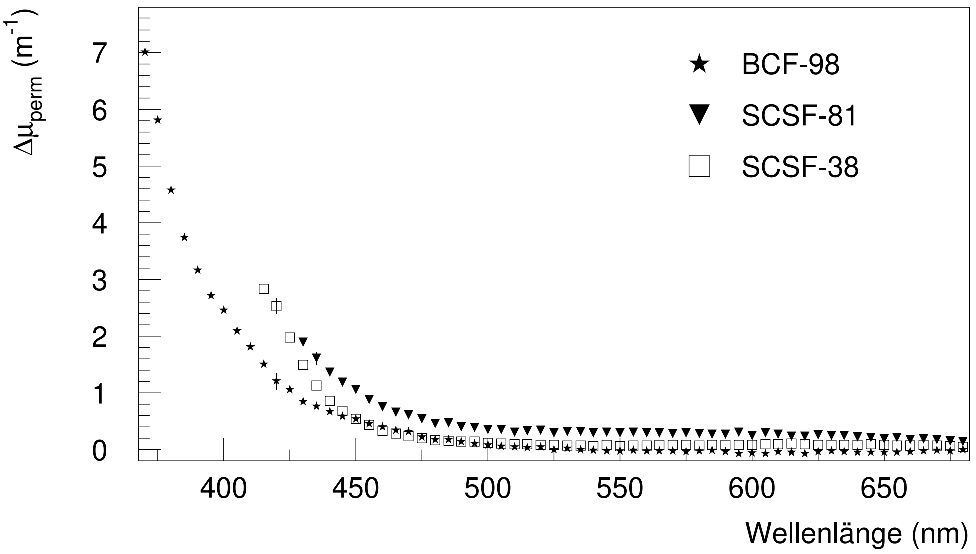

Abbildung 6.37: *Vergleich der Permanentschäden der blau szintillierenden Fasern und der klaren PS-Faser für eine Dosis von 2,2 kGy. Beispielhaft sind die relativen Unsicherheiten bei 420 nm (BCF-98 und SCSF-38) bzw. für 435 nm (SCSF-81) eingezeichnet.*

emittierenden Fasern SCSF-38 und SCSF-81 zeigen einen höheren Permanentschaden als die klare BCF-98-Faser bei gleicher Dosis von 2,2 kGy[16]. Insbesondere zu niedrigen Wellenlängen hin steigt der Schaden in den Szintillatoren stärker an als im Lichtleiter. Die Schäden bei hohen Wellenlängen liegen in SCSF-38 und BCF-98 in gleicher Größe. Allein SCSF-81 zeigt auch bei höheren Wellenlängen einen deutlichen Endschaden. Die Beobachtung der Szintillatoren bei kleinen Wellenlängen ist durch die Überlagerung mit dem Absorptionsbereich der zugesetzten Farbstoffe ausgeschlossen.

Insgesamt zeigen die den Szintillatoren zugesetzten Farbstoffe somit einen schwachen negativen Einfluss auf das Permanentschadensniveau.

6.7.3 Schädigungsverlauf

Für die klare Polystyrol-Faser BCF-98 wurde ein sich proportional zur Dosis entwickelnder Permanentschaden beobachtet, der im Vergleich zu Hochdosisbestrahlungen mit einer ^{60}Co-Quelle ([BP91a]) um den Faktor 13 stärker anstieg (s. Abb. 6.10, S. 58). Dabei wurde in den hier präsentierten Ergebnissen kein Unterschied nachgewiesen zwischen Bestrahlungen, in denen die Faser während der Bestrahlung sauerstofffrei wurde und solchen, in denen gelöster Sauerstoff in der Faser blieb. Für einen

---

[16] Bestrahlungsdaten liegen für die Faser BCF-98 für die Dosis von 2 kGy vor. Sie wurden aufgrund des sich linear mit der applizierten Dosis entwickelnden Permanentschadens (vgl. Kap. 6.2.4, S. 54 ff.) linear extrapoliert.

linearen Ansatz der dosisabhängigen Schadensentwicklung ergibt sich ein Übergang von der schnelleren Schädigung zur langsameren bei ca. 12 kGy applizierter Gesamtdosis.

Diese Nichtlinearität des induzierten Strahlenschadens ist für die Faser SCSF-38 ebenfalls beobachtet worden. Sie tritt hier bereits bei deutlich geringeren Bestrahlungsdosen auf, der Effekt ist dort jedoch weniger stark ausgeprägt. Unterhalb von 700 Gy steigt der Schaden steiler an, um sich später linear zu entwickeln. Der in [Boh99] für SCSN-38 im ZEUS-Betrieb beschriebene höhere Strahlenschaden (vgl. Kap. 2) kann mit diesem Effekt erklärt werden. Für die anderen Fasern entzieht sich der Verlauf der Permanentschadensentwicklung dem Experiment, da zu große Anteile ausheilender Absorption überlagert sind.

Die drei Kuraray-Szintillatoren zeigen zusätzlich zur kurzwelligen Schädigung, die der PS-Matrix zuzuschreiben ist, einen ausheilenden Schaden bei Wellenlängen oberhalb von 550 nm. In Fasern, die nicht von Kuraray stammen, gibt es diese Absorption nicht. Sie ist wahrscheinlich auf Zusätze, z. B. Antioxidanzien oder Farbstoffe in den Kuraray-Fasern zurückzuführen[17]. Die langwelligen Absorptionen werden jeweils von zwei Absorptionszentren hervorgerufen. Die Ausheilung läuft bei SCSF-38 praktisch vollständig, bei den beiden Fasern SCSF-81 und SCSF-81(Y7) auf einen Permanentschaden hin.

Die Zeitverläufe der ausheilenden Absorption in den verschiedenen Fasern ähneln sich: Direkt nach der Bestrahlung findet ein rascher Rückgang der Absorption statt, der in eine langsamere Ausheilung übergeht. Auch die spektrale Verteilung des langsam ausheilenden Anteils der langwelligen Absorption in SCSF-38 und SCSF-81 (s. Abb. 6.18, S. 71 und 6.24, S. 80) sind sich ähnlich insofern, als dass sie beide zu hohen Wellenlängen hin ansteigen. In SCSF-38 zeigt sich ein Maximum dieser Absorption bei 655 nm, in SCSF-81 erst bei 700 nm. Wahrscheinlich werden sie von ähnlichen Zusätzen hervorgerufen, evtl. handelt es sich um Antioxidanzien.

Die Auswirkung der ausheilenden Absorptionszentren auf den Fluoreszenzlichtbereich ist in SCSF-38 gering, auch wenn der spektrale Bereich breit ist. In SCSF-81 zeigte sich die ausheilende Absorption im gesamten Fluoreszenzlichtbereich. In dieser Faser wurde ein verändertes Strahlenverhalten bei größeren Dosen festgestellt, das mit einem Verbrauch der Antioxidanzien gedeutet werden kann: Die langsam ausheilende Absorption bildet sich bei großen Dosen nicht mehr, der Strahlenschaden bei kleinen Wellenlängen vergrößert sich. Die sich bis in den Fluoreszenzlichtbereich ausdehnende langsam ausheilende Absorption könnte also von Zerfallsprodukten dieser Antioxidanzien hervorgerufen sein.

Die Faser BCF-60 wurde nur qualitativ betrachtet. Sie zeigt im Gegensatz zu den anderen PS-Fasern wenig Schaden im kurzwelligen Bereich. Stattdessen bildet sie ein deutliches Absorptionssignal zwischen diesem Bereich und ihrem Emissionsspektrum. Eine Auswirkung auf die Fluoreszenz konnte nicht nachgewiesen werden. Der Nachteil dieser Faser liegt in der Lichtempfindlichkeit des verwendeten Farbstoffs, die zumindest in diesen Experimenten eine nähere Untersuchung verhinderte.

---

[17] In [BPHM94] zeigte sich bei Zumischung des Antioxidanz' AO-2 im Trägerstoff Polyvinyltoluol (PVT) eine breite vollständig ausheilende Absorption im Roten.

6.7.4 Einsatz der Szintillatoren in Experimenten

Der Einsatz der Szintillatorfasern in Hochenergie-Experimenten zur Messung der Energie von Streuteilchen erfordert eine hohe Stabilität des Lichtsignals unabhängig von äußeren Bedingungen. Dabei ist einerseits die Stabilität und Lichtausbeute nach längerem Betrieb aufgrund von Alterungseffekten und Strahlenschäden des Polymers kritisch, andererseits können auch sich schnell entwickelnde und wieder ausheilende Absorptionen, die das Fluoreszenzlicht beeinflussen, kurzfristig die Kalibration des Detektors verändern.

Der blaue Szintillator SCSF-38 zeigt sowohl bei den kurzzeitigen als auch bei den Permanentschäden nur wenig stärkere strahleninduzierte Absorptionen als die klare PS-Faser. Ein sich nicht proportional mit der Dosis entwickelnder Permanentschaden macht in einem Experiment zwar eine sporadische Überwachung der Kalibration notwendig, kurzzeitige Schwankungen in der Transmission der Faser im Fluoreszenzlichtspektrum sind jedoch verschwindend. Dennoch zeigt das Szintillationssignal der Faser deutlich stärkere Veränderungen als die Transmission allein, auch Ausheileffekte wurden beobachtet. Die Farbstoffe dieser Faser werden offensichtlich reversibel geschädigt bzw. inaktiviert, so dass es bei Untergrundstrahlung im Experiment zu Schwankungen kommen kann. Bei kleinen Dosisleistungen im Detektor sollte dieser Effekt nicht zu groß werden.

Die Faser SCSF-81 zeigt hingegen deutliche Erscheinungen von kurzzeitiger Absorption über das gesamte Fluoreszenzspektrum. Eine kurzfristige Zu- und Abnahme der Transmission bei Statusänderung des Teilchendetektors macht eine laufende Rekalibration des Kalorimeters notwendig, wenn die Dosisleistung der Untergrundstrahlung groß ist. In dieser Faser machten sich kleine Einflüsse auf die Fluoreszenzlichtausbeute bemerkbar, die sich nicht auf die Transmission, sondern auf direkte Einwirkung auf die Fluoreszenzfarbstoffe zurückführen lassen. Fluoreszenzlichtrückgang und Ausheilungseffekte der Absorption sind stärker ausgeprägt als bei SCSF-38.

Die Faser BCF-60 bildet in den Fehlergrenzen dieses Experiments auch bei großen Dosen nur ein schmales Absorptionsband unterhalb des Szintillationsbereiches aus. Bei größeren Wellenlängen zeigt sich nur eine kurzlebige Absorption, die sich über das gesamte Spektrum erstreckt. Jedoch war durch die hohe Lichtempfindlichkeit der Faser bereits der Einfluss des Transmissionslichtes zu groß, um gesicherte Daten aufnehmen zu können. Die Strahlenresistenz dieser Fasern sollte in geeigneteren Experimenten untersucht werden.

Aus diesen drei Fasersorten wurde für den Bau des 6 m-Taggers am ZEUS-Detektor die am besten geeignete ausgewählt. Diese Kalorimeterkomponente wird voraussichtlich einer hohen Strahlungsdosis von jährlich etwa 10–20 kGy ausgesetzt sein, die getaktet mit wechselndem Status des HERA-Speicherrings appliziert wird. Die Entscheidung fiel auf die Faser SCSF-38, die sich durch einen sehr geringen Teil an kurzlebiger Absorption im Fluoreszenzlichtbereich sowie eine leicht rekalibrierbare Aufsummierung der Strahlenschäden auszeichnet.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde das optische Verhalten von Kunststofflichtleitern und -szintillatoren untersucht, die zum Signaltransport bzw. zur Energiemessung in Teilchendetektoren an Hochenergiebeschleunigern zum Einsatz kommen. Die Fasern wurden mit Röntgenstrahlung geschädigt und dabei ihr Transmissionsverhalten beobachtet. Insgesamt wurden fünf PS-basierte Fasern und eine PMMA-Faser untersucht. Dies sind die Lichtleiter BCF-98 (PS) von Bicron und FL-51 (PMMA) von Hoechst sowie die PS-Szintillatoren SCSF-38, SCSF-81, SCSF-81(Y7) von Kuraray und BCF-60 von Bicron.

In den Lichtleitern entwickelte sich bei Sauerstoffanwesenheit eine permanente Absorption, die proportional zur applizierten Dosis anstieg. Ein Vergleich der Entwicklung des Permanentschadens in BCF-98 mit vorhandenen Daten von Hochdosisexperimenten zeigte, dass der Schadensanstieg für die untersuchten Dosen bis zu 6 kGy um Faktor 13 größer ist als bei großen Dosen. Dies weist darauf hin, dass die Strahlenempfindlichkeit bei größeren Dosen abnimmt.

In den Experimenten zeigte sich der positive Einfluss von Sauerstoff in der Faser auf die optische Absorption während der Bestrahlung. Die Schäden, die sich in den klaren Fasern entwickelten, stiegen ohne gelösten Sauerstoff in der PS-Faser um einen Faktor 3–4 stärker an als mit Sauerstoff. In der PMMA-Faser lag der Faktor bei 9–12. Bei Sauerstofffreiheit bilden sich hauptsächlich ausheilende Absorptionszentren. Sie heilen in BCF-98 unter O_2-Einfluss auf den gleichen dosisabhängigen Permanentschaden aus, der bei einer Bestrahlung mit gelöstem Sauerstoff erreicht wird.

Die untersuchte PMMA-Faser FL-51 zeigt bei Bestrahlung mit Dosen bis hin zum Sauerstoffverbrauch einen geringen Schaden im UV-Bereich. Der Punkt des Sauerstoffverbrauchs liegt bei einer Dosis von 400–660 Gy allerdings deutlich niedriger als in BCF-98 (2,7 kGy). Der von dieser Dosis an vorliegende oben beschriebene um Faktor 9–12 stärkere Anstieg des Strahlenschadens sowie eine beobachtete sehr langsame Ausheilung der Absorption machen den Einsatz dieses Lichtleiters in Hochdosisumgebungen fraglich.

In allen Fasern wurden auch bei Sauerstoffanwesenheit kurzlebige Absorptionszentren beobachtet. Sie verschwinden innerhalb von Stunden nach der Bestrahlung. In den klaren Fasern zeigten sich diese nur im UV- bzw. blauen Bereich. Sie werden im Polystyrol hervorgerufen durch die primär entstehenden Benzylradikale, die im Polymer eine Lebensdauer im Bereich von Stunden haben, bevor sie mit Sauerstoff zu Peroxiden weiterreagieren. Im PMMA werden die kurzlebigen Absorptionen von Peroxidradikalen hervorgerufen. Eine Annahme, dass die ständige Versorgung der Fasern mit Sauerstoff das Vorhandensein von kurzlebigen Absorptionszentren vollständig verhindert, ist also nicht richtig.

Ein vorgeschlagenes Modell der Kinetik beschreibt die zeitlichen Verläufe der Schädigung in der klaren Faser BCF-98 konsistent. Es beruht darauf, dass der gesamte Permanentschaden durch Rekombination von Radikalen verursacht wird, die während der Bestrahlung entstehen. Das Modell stellt die Annahme in Frage, dass Radikale und Permanentschadenszentren völlig unabhängig voneinander entstehen.

In allen Szintillatoren ergeben sich zusätzlich zur Schädigung des Basismaterials stark ausgeprägte ausheilende Absorptionen bei größeren Wellenlängen. In den Kuraray-Fasern entwickeln sich diese zwischen 550 und 700 nm. Sie werden in SCSF-38 und in SCSF-81 von je zwei Absorptionszentren hervorgerufen. Die zeitliche Entwicklung in Entstehung und Ausheilung verlief teilweise sehr schnell, eine mathematische Beschreibung des Verlaufs ist mit einfachen Rekombinationsmodellen nicht möglich. In SCSF-81 wurde eine kurzlebige Absorption über den gesamten Fluoreszenzlichtbereich beobachtet. Die Strahlenresistenz dieser Faser verschlechtert sich im Fluoreszenzlichtbereich durch Vorschädigung stark. Wahrscheinlich ist sie mit Antioxidanzien dotiert, die sich bei Dosen um 2 kGy bereits verbraucht haben.

Die für den Kalorimeter-Einsatz eines Szintillators entscheidende Größe ist die Auswirkung der Strahlung auf das Fluoreszenzlicht. Hierbei sind zwei Effekte zu trennen: der Einfluss der Strahlung auf die Transmission und die Beeinträchtigung der Szintillations- bzw. Wellenlängenschieberfarbstoffe.

Beim ersten Punkt zeigte sich in der Fasern SCSF-81 eine starke Auswirkung von kurzlebiger Absorption auf den Emissionsbereich der Fasern: Während der Bestrahlung geht die Fluoreszenzlichttransmission schnell zurück, danach verbessert sie sich deutlich. Die Einsatztauglichkeit dieser Fasersorten in Experimenten ist fraglich, wenn hohe Untergrundstrahlung mit stark variierenden Dosisleistungen vorliegt. Die Faser SCSF-38 bildet über die größten Teile ihres Fluoreszenzspektrums nur permanente Absorption aus, Ausheilungseffekte der Transmission für das Fluoreszenzlicht sind sehr gering. Für diese Faser konnte eine nicht lineare Permanentschadensentwicklung für Dosen unterhalb von 1 kGy gezeigt werden.

Der zweite Punkt ist die Schädigung der Fluoreszenzfarbstoffe selbst: Hier zeigte sich in beiden blau szintillierenden Fasern SCSF-38 und SCSF-81 ein Rückgang der Fluoreszenz, der nicht allein durch Transmissionseffekte erklärbar ist. In SCSF-81 ging während der Bestrahlung die Fluoreszenzlichtausbeute etwa um Faktor Zwei stärker zurück als die Transmission, in SCSF-38 sogar bis zu viermal so stark. In beiden Fasern zeigt sich eine Erholung der primären Lichtausbeute in den Ausheilungsphasen. Diese ist in SCSF-81 mit einer Verbesserung der Transmission einhergehend, in SCSF-38 handelt es sich allein um die Regenerierung der Farbstoffe. Hier wurde eine offensichtlich vollständig ausheilende „Deaktivierung“ der Farbstoffe durch die Bestrahlung festgestellt.

Anhang A

Transmissions- und Fluoreszenzspektren der untersuchten Fasern

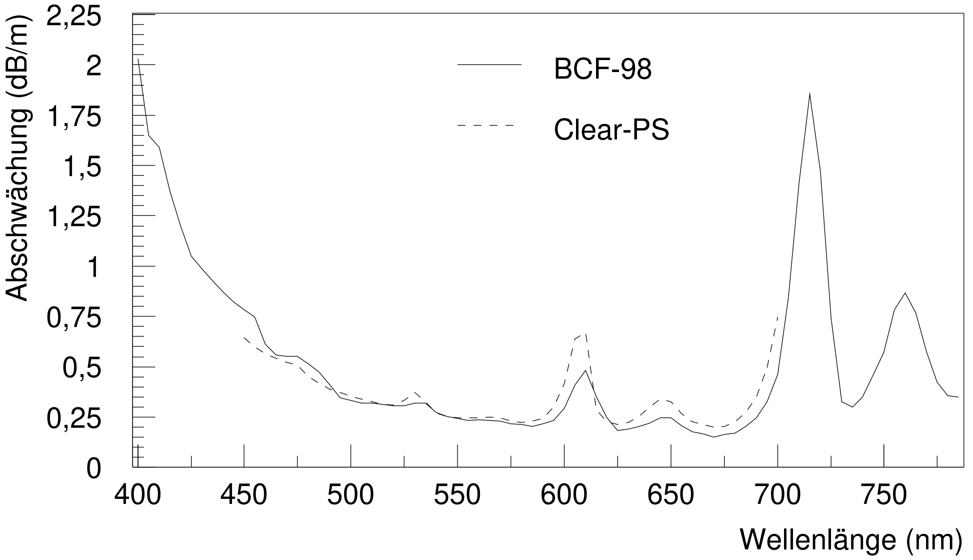

Abbildung A.1: *Transmissionsverlust von Licht in den klaren PS-Faser BCF-98 [Bic90] (durchgezogene Linie) und Clear-PS (Kuraray) [Kur] (unterbrochene Linie). Letztere bildet die Grundmatrix der Kuraray-Szintillatorfasern, wurde jedoch nicht untersucht.*

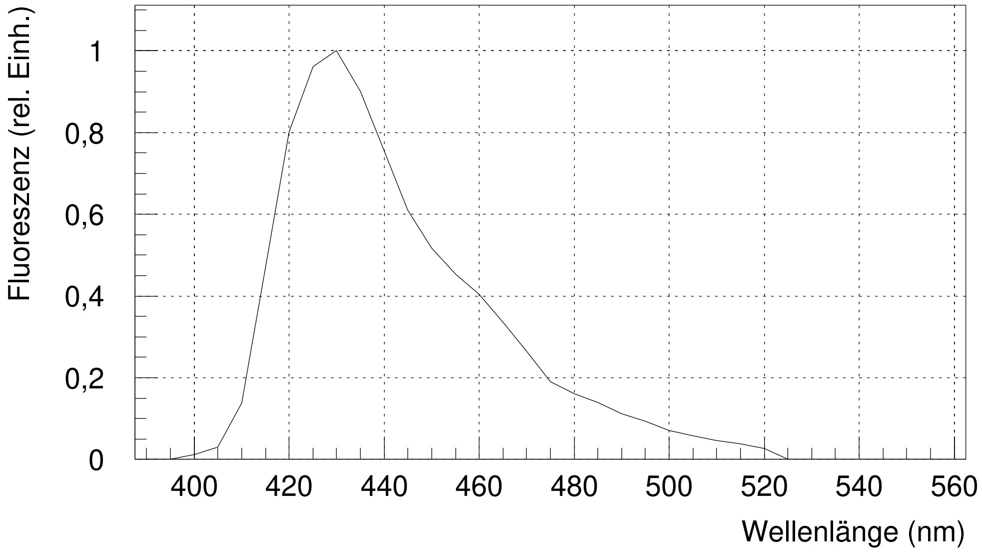

Abbildung A.2: *Fluoreszenzspektrum von SCSF-38, mit 350 nm UV-Licht 10 cm vom Auslesepunkt entfernt angeregt [Kur].*

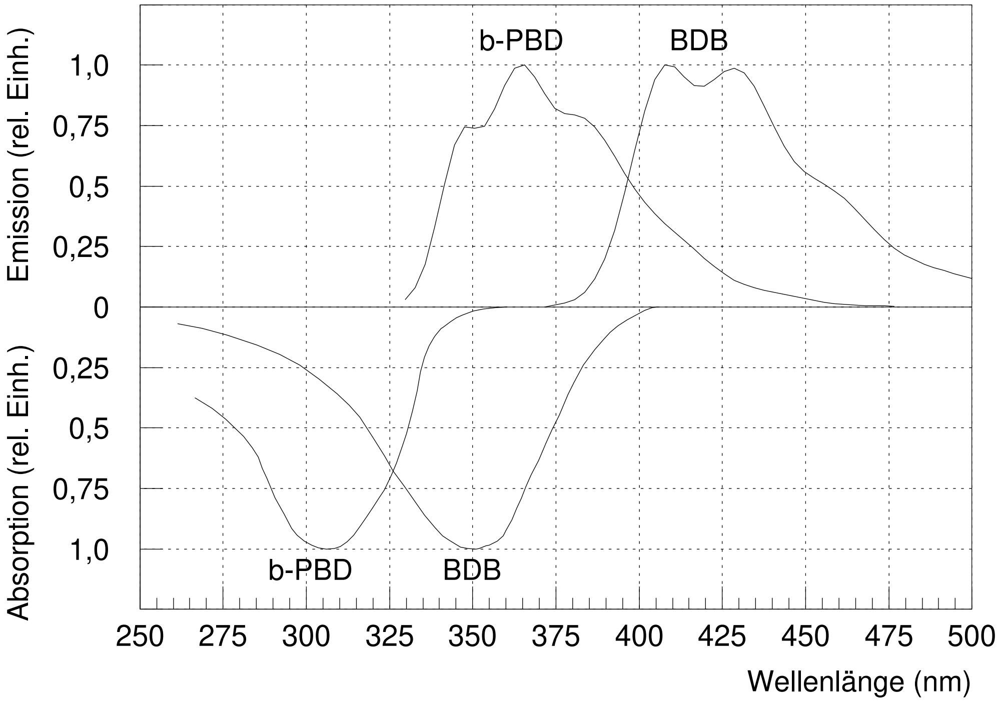

Abbildung A.3: *Absorptions- und Emissionsspektren der Farbstoffe b-PBD und BDB, die der Faser SCSF-38 zugesetzt sind [Kur].*

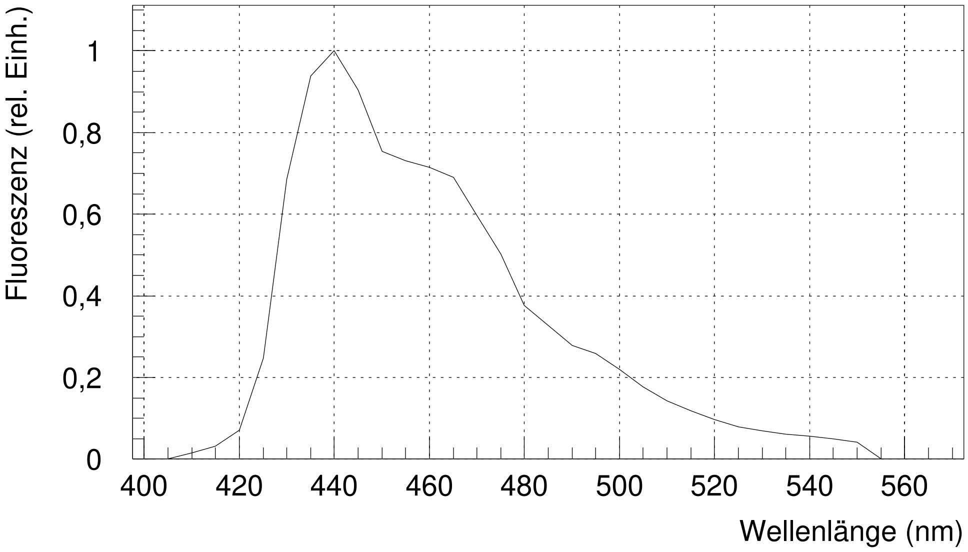

Abbildung A.4: *Fluoreszenzspektrum von SCSF-81, mit 370 nm UV-Licht 10 cm vom Auslesepunkt entfernt angeregt [Kur].*

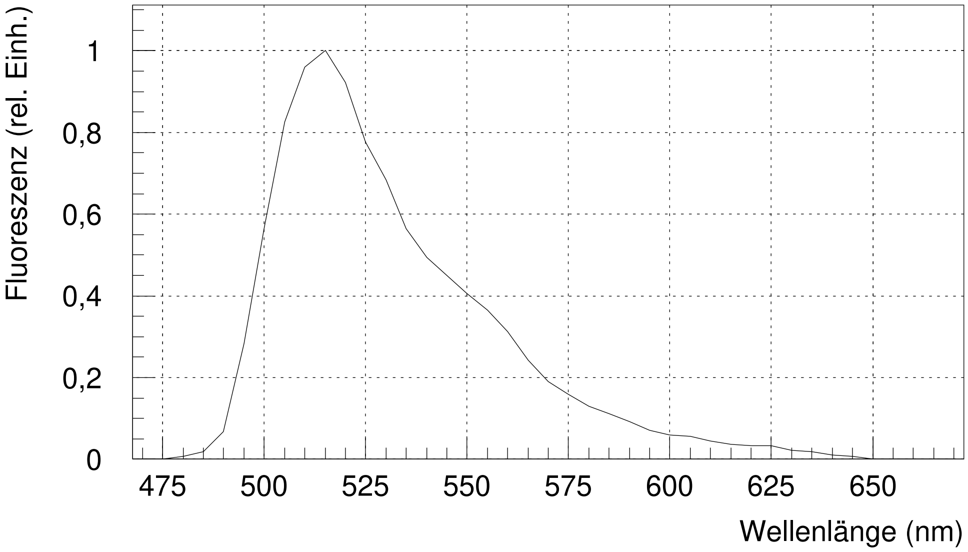

Abbildung A.5: *Fluoreszenzspektrum einer Y7-Faser, mit 440 nm Licht 10 cm vom Auslesepunkt entfernt angeregt [Kur].*

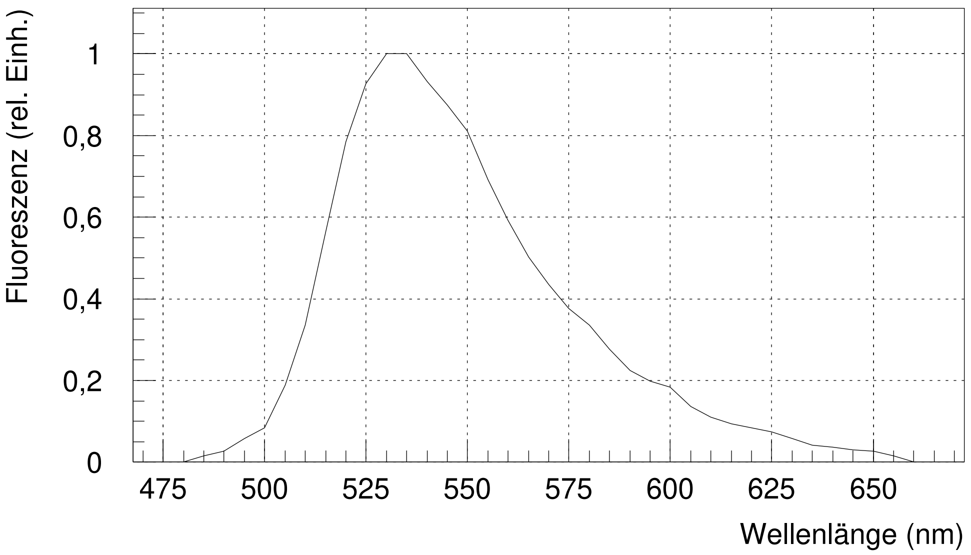

Abbildung A.6: *Fluoreszenzspektrum von BCF-60 [Bic90]. Zum Experiment, mit dem dieses Spektrum erlangt wurde, liegt keine Angabe vor.*

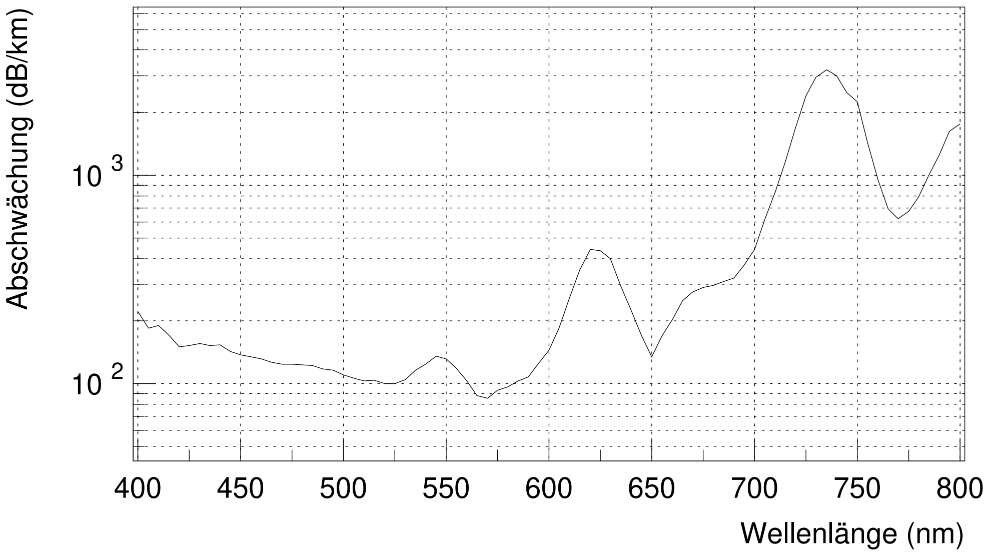

Abbildung A.7: *Transmissionsverlust von Licht im klaren PMMA-Lichtleiter FL-51 [Hoe92].*

Anhang B

Tabellen

B.1 Durchgeführte Bestrahlungen

Name	Dosis (kGy)	$\dot{D}$ (Gy/h)	Länge (cm)	∅ (mm)	Bemerkung
BCF-98					
w981009	2,0	39,5	8	2	
w990113	3,7	130	7,2	2	Atmosphären-Kammer Ar/N_2
w991202	6,0	128	7	2	Bestrahlungspause 4 h
w991220	5,16	43,9	7	2	Anodenstrom 6 mA
w1000504	0,23	33	88	1	fraktionierte Bestr. $3+3+1$ h
w1000516	0,14	35	88	1	
w1000823	0,9	33	88	1	
w1001018	1,2	40	10	1	
w1010105	1,3	32	88	1	
FL-51					
w1010329	1,2	43	100	1,5	fraktionierte Bestr. $6+22$ h

Tabelle B.1: *Bestrahlungen der Lichtleiter.*

Name	Dosis (kGy)	$\dot{D}$ (Gy/h)	Länge (cm)	Bemerkung
SCSF-38				
w1000229	1,1	36	10	fraktionierte Bestr. 20,5 h + 10 h
w1000323	2,18	36	10	fraktionierte Bestr. 3 × 20,2 h
SCSF-81				
w981221	0,06	3,2	100	55 kV Beschleunigungsspannung
w1000128	2,22	36	9,5	fraktionierte Bestr. 3 × 20,5 h
w1000222	0,74	36	9,5	vorgeschädigte Faser aus w1000128
SCSF-81(Y7)				
w981115	0,53	36	100	
BCF-60				
w1000522	2,3	38	9,6	fraktionierte Bestr. 3 × 20,25 h

Tabelle B.2: *Bestrahlungen der Szintillatoren.*

B.2 Datensätze in den Abbildungen

Abbildung	Daten
6.1	w991202
6.2	w991202
6.3	w1000823
6.4	w1000504
6.5	w1000823
6.6	w1000823
6.7	w981009, w991202, w991220, w1000504, w1000516, w1000823, w1001018, w1010105
6.8	w991202
6.10	w981009, w991202, w991220, w1000504, w1000516, w1000823, w1001018, w1010105
6.13	w990113, w1010105
6.14	w1001018
6.15	w1000823
6.16	w1000323
6.17	w1000323
6.18	w1000323
6.19	w1000323
6.20	w1000229, w1000323
6.21	w1000323
6.22	w1000128
6.23	w981221
6.24	w1000128
6.25	w1000128
6.26	w1000128, w1000222
6.27	w1000128, w1000222
6.28	w1000522
6.29	w1000522
6.30	w1000522
6.31	w1010329
6.32	w1010329
6.33	w1010329
6.34	w1010329
6.36	w1010329
6.37	w981009, w1000128, w1000323

B.3 Permanentschadensanstiegsparameter für BCF-98

Wellenlänge (nm)	$\mathrm{d}\Delta\mu/\mathrm{dD}$ $\left(\frac{10^{-3}}{\mathrm{m}\cdot\mathrm{kGy}}\right)$	Wellenlänge (nm)	$\mathrm{d}\Delta\mu/\mathrm{dD}$ $\left(\frac{10^{-3}}{\mathrm{m}\cdot\mathrm{kGy}}\right)$
380	2682 ± 151	495	122 ± 151
385	2060 ± 151	500	114 ± 151
390	1632 ± 104	505	106 ± 151
395	1366 ± 151	510	96 ± 151
400	1199 ± 151	515	91 ± 151
405	1051 ± 151	520	85 ± 152
410	915 ± 151	525	80 ± 151
415	783 ± 151	530	74 ± 151
420	656 ± 151	535	70 ± 129
425	548 ± 114	540	65 ± 131
430	463 ± 151	545	61 ± 151
435	406 ± 151	550	59 ± 150
440	362 ± 144	555	57 ± 151
445	326 ± 151	560	55 ± 151
450	294 ± 151	565	52 ± 151
455	267 ± 151	570	51 ± 151
460	240 ± 149	575	50 ± 151
465	216 ± 151	580	47 ± 130
470	197 ± 151	585	45 ± 148
475	177 ± 137	590	44 ± 151
480	160 ± 151	595	42 ± 151
485	148 ± 151	600	42 ± 151
490	133 ± 151		

Tabelle B.3: *BCF-98: Anstiegsparameter des Permanentschadens aus der linearen Anpassung an alle durchgeführten Untersuchungen bis 6 kGy.*

B.4 Permanentschadensspektrum in BCF-98 für verschiedene Dosen

Wellenlänge	Permanentschaden $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}(\mathrm{D})$ (m^{-1})					
(nm)	140 Gy	230 Gy	900 Gy	1,2 kGy	1,3 kGy	2,0 kGy
380	—	—	—	1,89 ± 0,07	—	4,36 ± 0,16
385	—	—	—	1,67 ± 0,07	—	3,58 ± 0,16
390	—	—	—	1,38 ± 0,07	—	3,09 ± 0,14
395	0,27 ± 0,05	—	—	1,26 ± 0,07	—	2,67 ± 0,13
400	0,25 ± 0,05	0,18 ± 0,04	0,82 ± 0,06	1,08 ± 0,07	1,02 ± 0,08	2,36 ± 0,12
405	0,22 ± 0,04	0,17 ± 0,04	0,78 ± 0,07	0,91 ± 0,07	1,00 ± 0,07	2,06 ± 0,12
410	0,17 ± 0,04	0,15 ± 0,04	0,70 ± 0,07	0,81 ± 0,07	0,93 ± 0,07	1,77 ± 0,12
415	0,13 ± 0,03	0,14 ± 0,03	0,62 ± 0,06	0,75 ± 0,07	0,82 ± 0,07	1,50 ± 0,11
420	0,11 ± 0,03	0,11 ± 0,03	0,53 ± 0,06	0,62 ± 0,07	0,71 ± 0,07	1,25 ± 0,11
425	0,08 ± 0,03	0,10 ± 0,03	0,45 ± 0,06	0,52 ± 0,07	0,61 ± 0,07	1,07 ± 0,10
430	0,07 ± 0,03	0,08 ± 0,03	0,39 ± 0,05	0,47 ± 0,07	0,53 ± 0,07	0,92 ± 0,09
435	0,06 ± 0,03	0,07 ± 0,03	0,34 ± 0,05	0,42 ± 0,07	0,47 ± 0,07	0,84 ± 0,11
440	0,05 ± 0,03	0,06 ± 0,03	0,30 ± 0,05	0,37 ± 0,06	0,42 ± 0,07	0,73 ± 0,11
445	0,05 ± 0,03	0,05 ± 0,03	0,27 ± 0,05	0,32 ± 0,06	0,38 ± 0,06	0,66 ± 0,10
450	0,04 ± 0,02	0,04 ± 0,03	0,24 ± 0,05	0,29 ± 0,06	0,34 ± 0,06	0,62 ± 0,10
455	0,03 ± 0,02	0,04 ± 0,02	0,21 ± 0,04	0,27 ± 0,06	0,30 ± 0,06	0,52 ± 0,10
460	0,03 ± 0,02	0,03 ± 0,02	0,19 ± 0,05	0,23 ± 0,06	0,26 ± 0,06	0,48 ± 0,10
465	0,02 ± 0,02	0,02 ± 0,02	0,16 ± 0,04	0,21 ± 0,06	0,23 ± 0,05	0,41 ± 0,10
470	0,02 ± 0,02	0,02 ± 0,02	0,14 ± 0,04	0,19 ± 0,05	0,21 ± 0,05	0,38 ± 0,10
475	0,01 ± 0,02	0,01 ± 0,02	0,12 ± 0,05	0,17 ± 0,06	0,18 ± 0,05	0,31 ± 0,08
480	—	—	0,10 ± 0,05	0,16 ± 0,06	0,15 ± 0,05	0,27 ± 0,08
485	—	—	0,09 ± 0,05	0,15 ± 0,05	0,14 ± 0,04	0,24 ± 0,09
490	—	—	0,08 ± 0,04	0,16 ± 0,05	0,13 ± 0,05	0,23 ± 0,08
495	—	—	0,07 ± 0,04	0,14 ± 0,05	0,11 ± 0,05	0,22 ± 0,09
500	—	—	0,06 ± 0,04	0,13 ± 0,04	0,10 ± 0,05	0,18 ± 0,08
505	—	—	0,05 ± 0,04	0,12 ± 0,04	0,09 ± 0,06	0,17 ± 0,08
510	—	—	0,05 ± 0,04	0,13 ± 0,04	0,09 ± 0,06	0,14 ± 0,08
515	—	—	0,04 ± 0,04	0,13 ± 0,04	0,08 ± 0,06	0,14 ± 0,08
520	—	—	0,04 ± 0,04	0,12 ± 0,05	0,07 ± 0,06	0,13 ± 0,08
525	—	—	0,04 ± 0,04	0,12 ± 0,04	0,07 ± 0,06	0,12 ± 0,08
530	—	—	0,03 ± 0,04	0,13 ± 0,04	0,06 ± 0,06	0,11 ± 0,08

Tabelle B.4: *BCF-98: Permanentschäden für verschiedene Dosen.*

B.5 Permanentschadensspektrum in SCSF-38 für verschiedene Dosen

Wellenlänge	Permanentschaden $\Delta\mu_{\mathrm{perm}}(\mathrm{D})$ (m^{-1})			
(nm)	725 Gy	1,1 kGy	1,45 kGy	2,18 kGy
415	1,23 ± 0,05	1,65 ± 0,08	2,17 ± 0,09	2,83 ± 0,12
420	1,09 ± 0,05	1,43 ± 0,09	1,92 ± 0,09	2,53 ± 0,12
425	0,85 ± 0,04	1,12 ± 0,08	1,48 ± 0,08	1,99 ± 0,11
430	0,62 ± 0,04	0,83 ± 0,07	1,06 ± 0,08	1,44 ± 0,11
435	0,47 ± 0,04	0,61 ± 0,07	0,81 ± 0,07	1,11 ± 0,11
440	0,37 ± 0,04	0,46 ± 0,07	0,61 ± 0,07	0,86 ± 0,10
445	0,29 ± 0,03	0,37 ± 0,07	0,50 ± 0,06	0,68 ± 0,09
450	0,24 ± 0,03	0,30 ± 0,07	0,40 ± 0,06	0,54 ± 0,08
455	0,19 ± 0,03	0,24 ± 0,07	0,31 ± 0,07	0,43 ± 0,09
460	0,17 ± 0,03	0,20 ± 0,07	0,26 ± 0,06	0,36 ± 0,08
465	0,14 ± 0,03	0,17 ± 0,07	0,23 ± 0,06	0,30 ± 0,08
470	0,12 ± 0,03	0,14 ± 0,07	0,19 ± 0,06	0,26 ± 0,08
475	0,11 ± 0,03	0,12 ± 0,07	0,18 ± 0,07	0,23 ± 0,08
480	0,10 ± 0,04	0,12 ± 0,07	0,15 ± 0,08	0,18 ± 0,08
485	0,09 ± 0,04	0,11 ± 0,07	0,14 ± 0,07	0,18 ± 0,08
490	0,08 ± 0,04	0,11 ± 0,07	0,12 ± 0,06	0,15 ± 0,08
495	—	—	0,11 ± 0,04	0,14 ± 0,04
500	—	—	—	0,11 ± 0,04
505	—	—	—	0,10 ± 0,04
510	—	—	—	0,08 ± 0,04

Tabelle B.5: *SCSF-38: Permanentschäden für verschiedene Dosen.*

Anhang C

Berechnung des Transmissionsverlustes für das Fluoreszenzlicht

Während der Bestrahlung von Szintillatoren wird das durch die Röntgenquanten entstehende Fluoreszenzlicht im Nullsignal aufgenommen. Dabei findet keine spektrale Analyse statt. Die Intensität und die Konstanz des Fluoreszenzlichtsignals sind für den Detektorbau jedoch von besonderem Interesse. Aus den gemessenen Transmissionsentwicklungen lassen sich die Einflüsse der Absorption in der Faser auf das Fluoreszenzlicht berechnen. Diese Berechnung lässt es zu, Transmissionseffekte von Effekten, die direkt an den Farbstoffen stattfinden, zu trennen.
Für die Berechnung der Transmissionsverluste des Fluoreszenzlichtes werden drei Annahmen gemacht:

a) Die Schädigung der szintillierenden Faser ist über die gesamte Länge homogen.

b) Das während der Bestrahlung induzierte Fluoreszenzlicht entsteht homogen im Bestrahlungsbereich.

c) Das Emissionsspektrum des Fluoreszenzlichtes ändert sich während der Bestrahlung nicht.

Der letzte Punkt ist dabei am unsichersten: werden Farbstoffe durch Strahlung geschädigt, ist es nicht auszuschließen, dass sich dies außer in einer Inaktivierung auch in einer Veränderung des Emissionsspektrums zeigen kann. Allerdings kann man bei einer Zerstörung eines Teils der Szintillationsfarbstoffe annehmen, dass dieser Teil gar nicht mehr zur Emission beiträgt und sich so das Fluoreszenzspektrum nicht ändert.

Basis für die Berechnungen ist das Fluoreszenzspektrum des jeweiligen Szintillators, wie es durch den Hersteller angegeben ist (vgl. Anhang A). Dieses Licht wird während der Bestrahlung homogen in der Faser induziert und muss von seinem jeweiligen Ort zur Ausleseseite der Faser transportiert werden, wobei es von der geschädigten Faser verstärkt absorbiert werden kann. In einer solchen Fasergeometrie (Abb. C.1) gilt für ein beliebiges Längenelement, in dem Licht mit der Intensität pro Längenelement I_0 mit der Entfernung l zum Ausleseende entsteht:

$$dI(l,\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \mathrm{e}^{-\mu(\lambda)\cdot l} \cdot dl \quad . \tag{C.1}$$

Die Länge l gilt für geradliniges Licht; bei isotroper Emission des Lichtes verlängert sich der Weg entsprechend. In den vorgestellten PS-Szintillatoren mit PMMA-Cladding beträgt der maximale Öffnungswinkel für Totalreflexion 40,8° (vgl. Abschnitt 3.1). Daraus resultiert eine Verlängerung des Lichtweges um höchstens 6,7 %. Wird das Licht homogen in der Faser emittiert, treten alle Entfernungen für das Fluoreszenzlicht bis hin zur Faserlänge L auf. Gl. C.1 wird zu:

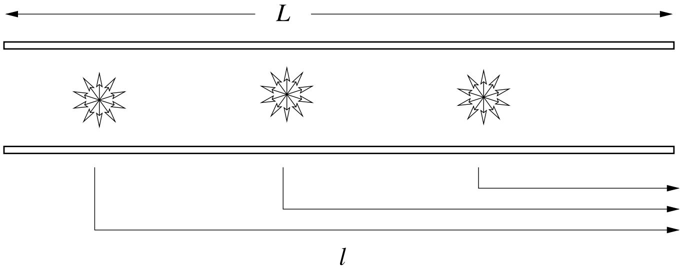

Abbildung C.1: *Wird das Fluoreszenzlicht homogen in der Faser induziert, erfolgt die Berechnung der Intensität nach Gleichung C.2.*

$$\begin{aligned} I(\lambda) &= \int\limits_{l=0}^{L} I_{\mathrm{ges}}(\lambda) \cdot \mathrm{e}^{-\mu(\lambda)\cdot l} \mathrm{d}l \\ &= \frac{I_{\mathrm{ges}}(\lambda)}{\mu(\lambda)} \left(1 - \mathrm{e}^{-\mu(\lambda)\cdot L}\right) \quad . \end{aligned} \tag{C.2}$$

Dabei beschreibt $I_{\mathrm{ges}}(\lambda)$ die gesamte Intensität des aus dem Längenelement in Nachweisrichtung emittierten Fluoreszenzlichtes.

Zur Berechnung der Absorption des Fluoreszenzlichtes zu jeder Zeit wird die wellenlängenabhängige Intensität des Fluoreszenzspektrums des jeweiligen Szintillators eingesetzt. Die Gleichung wird durch den zugehörigen Absorptionskoeffizienten ergänzt, der von der Wellenlänge sowie der verstrichenen Zeit bzw. Bestrahlungsdauer abhängig ist:

$$I(\lambda,t) = \frac{I_{\mathrm{ges}}(\lambda)}{\mu(\lambda,t)} \left(1 - \mathrm{e}^{-\mu(\lambda,t)\cdot L}\right) \quad , \tag{C.3}$$

wobei sich der momentane Absorptionskoeffizient als:

$$\mu(\lambda,t) = \mu_0(\lambda) + \Delta\mu(\lambda,t) \tag{C.4}$$

berechnet. Diese Berechnung ergibt eine über das Fluoreszenzspektrum der Faser integrierte Absorption des Szintillationslichtes. Die Schwächung ist dabei wellenlängenabhängig. Durch die Eigenschaft der PS-Fasern, Permanentschäden zu kleinen Wellenlängen hin zu bilden, wird das Fluoreszenzspektrum zu größeren Wellenlängen hin verschoben. Während der Transmission des Fluoreszenzlichts in der geschädigten Faser werden so kleine Wellenlängen stärker absorbiert als große[1].

Die als Ausgangswerte benötigten Daten für den Absorptionskoeffizienten der ungeschädigten Faser μ_0 wurden mit Hilfe des Experimentieraufbaus bestimmt. Hierzu wurde das vom Experiment aufgenommene Transmissionsspektrum mit einer eingesetzten Probe mit dem ohne Probe verglichen. Zusätzlich wurden für SCSF-38 μ_0 aus unabhängigen Messungen [Kun99] zum Vergleich herangezogen. Um die vom Faserhersteller angegebenen spektralen Fluoreszenzlichtdaten auf den hier verwendeten Experimentieraufbau abzustimmen und so mit den hier ermittelten Transmissionsdaten vergleichen zu können, wurden die spektralen Empfindlichkeiten von Monochromator und Photomultiplier berücksichtigt. Die Angaben hierzu wurden vom jeweiligen Hersteller übernommen.

---

[1] Diese Verschiebung durch Selbstabsorption findet auch in ungeschädigten Fasern statt, abhängig von der Transmissionslänge wird vom Hersteller Kuraray ein jeweils anderes Fluoreszenzspektrum angegeben.

Literaturverzeichnis

[Bic90] Bicron Corporation, Scintillating Optical Fibers, Katalog, Newbury, Ohio, 1990

[Bod97] B. Bodmann, Vergleichende Alanin-Dosimetrie und Untersuchung strahleninduzierter Schäden an SCSN38 mit Hilfe der Elektronen-Spin-Resonanz-Spektroskopie, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1997

[Bod] B. Bodmann, Dissertation, Universität Hamburg, in Vorbereitung

[Boh99] I. Bohnet, Investigations on Uniformity, Radiation Resistance and Calibration of ZEUS Calorimeter Components at HERA, Dissertation, Universität Hamburg, 1999

[BK64] S. E. Bresler and E. N. Kazbekov, Macroradical Reactivity Studied by Electron Spin Resonance, Fortschr. Hochpolym.-Forsch. Bd. 3, S. 688-711, 1964

[BP91a] A. D. Bross and A. Pla-Dalmau, Radiation-Induced Hidden-Absorption Effects in Polystyrene-Based Plastic Scintillators, *Radiation Effects on Polymers, ACS Symposium Series 475*, 578-590, 1991

[BP91b] A. D. Bross and A. Pla-Dalmau, Radiation Damage of Plastic Scintillators, Fermilab-Pub.91/308, 1991

[BPHM94] A. Pla-Dalmau, A. D. Bross, C. R. Hurlbut and S. W. Moser, Radiation Effects in Polymers for Plastic Scintillation Detectors, Fermilab-Conf-94/096, 1994

[Bus97] W. Busjan, Strahlungsresistenz szintillierender Kunststoffasern in der Hochenergiephysik: Entstehung und Zerfall kurzlebiger Absorptionszentren, Dissertation Universität Hamburg, 1997

[Bus98] W. Busjan, K. Wick, T. Zoufal, Radiation induced absorption due to shortlived absorption centers in plastic scintillators, NIMB (Proc. Suppl.) 61B (1998), 504-508

[Bus99] W. Busjan, K. Wick, T. Zoufal, Shortlived absorption centers in plastic scintillators and their influence ond the fluorescence light yield, NIMB 152 (1999), 89-104

[Chu93] M. Chung, S. Margulies, Effects of Light on Scintillating Fibers containing 3-Hydroxyflavone, Departm. of Physics, Univ. of Illinois, Chicago, 1993

[Clo88] R. Clough, Radiation-Resistant Polymers, *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*, 13:667-708, 1998

[Dan96] A. Dannemann, Untersuchungen zur Strahlungsresistenz polymerer Materialien für den Einsatz in Experimenten der Hochenergiephysik, Dissertation, Universität Hamburg, 1996

[DFG70] C. David, D. Fuld, G. Geukens, Radiolysis of Polymethylmethacrylate in the Presence of Ethylmercaptan, Die Makromolekulare Chemie 139 (1970), 269-276 (Nr. 3454)

[Dys90] N. A. Dyson, X-rays in atomic and nuclear physics, Cambridge, 1990

[GVH89] K. J. F. Gaemers, M. Van Der Horst, Nucl.Phys. B 316 (1989) 269; M. Van Der Horst, Nucl.Phys. B 347 (1990) 149

[GRO95] H1 SPACAL GROUP, Performance of an Electromagnetic Lead/Scintillating-Fibre Calorimeter for the H1 Detector, DESY Rote Berichte, 165, 1995

[Har69] L. A. Harrah, ESR of radicals produced in Co-60 gamma-irradiated polystyrene, Organic Solid State Chemistry, 197-210, Gordon and Breach Science Publishers, New York, 1969

[HH93] D. Horstmann und U. Holm, Fluorescence Quenching of Plastic Scintillators in Oxygen, Rad.Phys.Chem. Vol. 41, 395-400, 1993

[Hoe92] Hoechst AG, Infolite Polymer Optical Fiber, Technische Informationen, Frankfurt, 1992

[Hug81] C. Huggenberger and H. Fischer, 32. Absorption spectra and termination kinetics of transient free radicals in solution observed by UV/VIS spectroscopy with modulated excitation, Helvetica Chimica Acta, 64, 338-353, 1981

[Kun99] M. Kunz, Optische Untersuchungen an Copolymeren aus Polymethylmethacrylat und Polystyrol, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1999

[Kur] Kuraray Co., Ltd., Scintillation Materials, Katalog, Tokyo, Japan

[MB93] A. G. Michette and C. J. Buckley, X-ray Science and Technology, Institute of Physics Publishing, Bristol, Philadelphia, 1993

[Lad97] R. Ladwig: Untersuchung von Strahlenschäden an Basismaterialien für Szintillatoren und Lichtleiter mittels Transmissionsspektroskopie und Elektronspinresonanz, Diplomarbeit, Univ. Hamburg, 1997

[Lat01] N. Latuske, Untersuchung von szintillierenden Fasern für ein Spaghetti-Kalorimeter auf ihre Strahlungshärte, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2001

[PAW95] PAW – Physics Analysis Workstation – An Introductory Tutorial, CERN Program Library Long Writeup Q121, 1995

[PK92] W. Petzold und H. Krieger, Strahlenphysik, Dosimetrie und Strahlenschutz, Band 1: Grundlagen, Stuttgart, 3. Auflage, Teubner Verlag, 1992

[WSC93] J. S. Wallace, M. B. Sinclair, K. T. Gillen and R. L. Clough, Color Center Annealing in γ-irradiated Polystyrene, under Vacuum and Air Atmospheres, Rad.Phys.Chem. Vol. 41, No.1/2, 85-100, 1993

[Wic02] K. Wick, private Mitteilungen, Universität Hamburg, 2002

[Wul95] B. Wulkop, Messung von Strahlenschäden in Szintillatoren und Lichtleitern während und nach der Bestrahlung mit UV-Licht und γ-Strahlen, Diplomarbeit, Universität Hamburg 1995

[ZEU99] ZEUS Collaboration, The upgraded Luminosity System for the ZEUS Experiment, PRC-99-09, 1999

[Yag99] K. Yagura, Kuraray Co., Ltd., private Mitteilung

[Zie] A. Ziegler, Dissertation, Universität Hamburg, in Vorbereitung

[Zou97] T. Zoufal, Onlinemessung von Strahlenschäden an Plastikszintillatoren, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1997

Danksagung

An dieser Stelle bedanke ich mich sehr herzlich bei all denen, die zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen haben:

- bei Herrn Prof. Dr. K. Wick für die Aufgabenstellung und die intensive Betreuung, zudem für hervorragende Anregungen und aufschlussreiche Diskussionen;
- bei Herrn Dr. U. Holm für Tipps und Anregungen in allen Lebenslagen sowie eine stete Unterstützung mit seinem reichhaltigen Literaturschatz;
- bei R. P. Feller für die immer währende Unterstützung in Hard- und Software;
- bei allen gegenwärtigen und ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Teilchenphysik I des Instituts für Experimentalphysik für die außerordentlich fröhliche und produktive Arbeitsatmosphäre, die es an Diskussionen, gegenseitiger Hilfe und Grillabenden nicht mangeln ließ: M. Berghaus, B. Bodmann, Dr. I. Bohnet, Dr. A. Dannemann, S. Ehrichs, S. Faghihi, W. Gärtner, Dr. N. Gendner, S. Göb, A. Henkel, Dr. D. Horstmann, S. Jacobs, N. Krumnack, D. Kummerow, M. Kunz, A. Kunze, R. Ladwig, N. Latuske, M. Moritz, Dr. A. Meyer-Larsen, E.-A. Möller, T. Neumann, H. Prause, Dr. H. Salehi, S. Schacht, S. Thies, B. Wulkop und A. u. A. Ziegler;
  mein besonderer Dank gilt hier meinem Vorgänger Dr. W. Busjan;
- bei allen Mitgliedern der mechanischen und elektronischen Werkstatt des Instituts, insbesondere Herrn Wleklinski und Herrn Hamdorf für den netten Umgang und die stets zuverlässige und schnelle Anfertigung der gewünschten Teile;
- bei den Lektoren: Bernd, Claudia, Daniela, Gisela, Stefan, Werner und Wolfgang;
- und nicht zuletzt bei meiner Familie, die mich stets unterstützt, und meiner Claudia, deren Geduld oft auf die Probe gestellt wurde und die mich immer wieder aufbaut.