



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

## DOSISREKONSTRUKTION IM EREIGNISFALL MIT HILFE VON LUMINESZENZ- UND EPR-METHODEN AN UMGEBUNGSMATERIALIEN

BMU - 2003-629



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

**BMU – 2003-629**

**Dosisrekonstruktion im Ereignisfall mit Hilfe von  
Lumineszenz- und EPR-Methoden an  
Umgebungsmaterialien**

Dr. H.Y. Göksu

Dr. R. Meckbach

Dr. A. Wieser

Dr. M. Niedermayer

## **IMPRESSUM**

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde durch das GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg, Arbeitsgruppe Risikoanalyse (Dr. P. Jacob) erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

### **Herausgeber:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Arbeitsgruppe RS I 1  
Postfach 12 06 29  
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2003

# INHALT

<b>1</b>	<b>Ziel des Forschungsvorhabens</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Methodik</b>	<b>3</b>
<b>2.1</b>	<b>Herangehensweise</b>	<b>3</b>
<b>2.2</b>	<b>Verwendete „Werkzeuge“</b>	<b>4</b>
2.2.1	Lumineszenz-Messungen	4
2.2.2	EPR-Messungen	5
2.2.3	Die Monte Carlo Simulation des Photonentransportes	5
<b>3</b>	<b>Verwendbarkeit personenbezogener Materialien zur Dosisrekonstruktion</b>	<b>6</b>
<b>3.1</b>	<b>Chipkarten</b>	<b>7</b>
3.1.1	TL- und OSL-Eigenschaften von Chipkarten	7
3.1.2	IRSL-Ausleuchtcurven und ihre thermische Stabilität	8
3.1.3	Dosiswirkung und Reproduzierbarkeit der Messergebnisse	11
3.1.4	Zusammenfassung und Empfehlung	12
<b>3.2</b>	<b>Zahnfüllungsmaterialien</b>	<b>13</b>
3.2.1	Beschreibung der möglichen Materialien	13
3.2.2	Probenaufbereitung	14
3.2.3	Voruntersuchungen	15
3.2.4	TL-Eigenschaften: Dosiswirkung und Nullsignal	17
	3.2.4.1 Ergebnis: Komposit-Materialien	19
	3.2.4.2 Ergebnis: Glasionomerzement	21
3.2.5	TL-Eigenschaften: Einfluss von Licht auf das Messsignal	22
	3.2.5.1 Ergebnis: Komposit-Materialien	22
	3.2.5.2 Ergebnis: Glasionomerzement	23
3.2.6	OSL-Messungen	24
3.2.7	Zusammenfassung und Empfehlung	25
<b>3.3</b>	<b>Perlmutterknöpfe, Medikamente und künstliche Rubine in Uhren</b>	<b>25</b>
<b>4</b>	<b>Entwicklung von Optimierten Messprotokollen für die Dosisrekonstruktion an Baumaterialien mithilfe von Lumineszenzverfahren</b>	<b>28</b>

<b>5</b>	<b>Monte-Carlo-Simulationen zur Unterstützung der Bestimmung externer Strahlendosen mit Lumineszenz-Verfahren</b>	29
<b>5.1</b>	<b>Vorbemerkung</b>	29
<b>5.2</b>	<b>Konversionsfaktoren für die Berechnung der Dosen von Strahlung aus radioaktiven Wolken sowie von am Boden deponierten Radionukliden</b>	30
<b>5.3</b>	<b>Konversionsfaktoren für räumlich heterogene Deposition der Radionuklide bzw. bei Kontamination der Ziegelmauer</b>	33
<b>5.4</b>	<b>Einfluss der Quellenkonfiguration auf den Dosisverlauf mit der Höhe der Probenahme über dem Boden</b>	36
<b>5.5</b>	<b>Einfluss der Quellenkonfiguration auf das Tiefenprofil der Dosis im Ziegelstein</b>	37
<b>6</b>	<b>Literatur</b>	41
<b>7</b>	<b>Danksagung</b>	42

**ANHANG: Messverfahren zur Dosisrekonstruktion unter Verwendung von Lumineszenz-Methoden anhand von Ziegelsteinen**

<b>A 1</b>	<b>Einleitung</b>	A- 1
<b>A 2</b>	<b>Feldarbeit</b>	A- 2
<b>A 2.1</b>	<b>Methoden der Felderfassung</b>	A- 2
<b>A 2.2</b>	<b>Probensammlung</b>	A- 3
<b>A 2.3</b>	<b>Bodenbeprobung</b>	A- 3
<b>A 2.4</b>	<b>Messung der Dosisleistung</b>	A- 4
<b>A 2.5</b>	<b>In-situ-Gammaspektrometrie</b>	A- 5
<b>A 2.6</b>	<b>Archivierung und Dokumentation</b>	A- 5

<b>A 3</b>	<b>Probenaufbereitung</b>	A- 6
<b>A 3.1</b>	<b>Quarzextraktion aus den Ziegelsteinen</b>	A- 6
<b>A 3.2</b>	<b>Extraktion von polymineralischem Feinkorn aus Ziegelsteinen</b>	A- 7
<b>A 4</b>	<b>Dosiermittlung unter Verwendung von Lumineszenzmethoden</b>	A- 8
<b>A 4.1</b>	<b>Quellenkalibrierung</b>	A- 8
<b>A 4.2</b>	<b>Ermittlung der kumulativen Dosis in Quarz oder Feldspat</b>	A- 9
<b>A 4.3</b>	<b>Voruntersuchungen für die TL-Messung</b>	A- 9
<b>A 4.4</b>	<b>Bestimmung der kumulativen Dosis in Quarz</b>	A-10
<b>A 4.5</b>	<b>Bestimmung der anthropogenen kumulativen Dosis</b>	A-10
<b>A 5</b>	<b>Bestimmung der natürlichen Dosisleistung</b>	A-11
<b>A 5.1</b>	<b>„Thick source alpha counting“ für die Bestimmung der U- und Th-Dosisbeiträge</b>	A-11
<b>A 5.2</b>	<b>Bestimmung der Beta-Dosisleistung mithilfe dünner <math>\alpha</math>-<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>: C – Dosimeter</b>	A-12
<b>A 6</b>	<b>Empfehlungen</b>	A-13
<b>A 7</b>	<b>Messesequenzen</b>	A-14
<b>A 8</b>	<b>Zitierte und weiterführende Literatur</b>	A-18

# 1 Ziel des Forschungsvorhabens

Im Lauf der letzten 50 Jahre wurde infolge verschiedener Unfälle eine nicht unerhebliche Zahl von Personen radioaktiver Strahlung in unterschiedlichem Ausmaß ausgesetzt. Da sich auch trotz größter Vorsichtsmaßnahmen immer wieder Unfälle ereignen, steigt die Anzahl der Betroffenen immer weiter an. Nach derartigen Ereignissen zeigt sich sehr häufig, dass nicht ausreichend direkte Messungen im Verlauf des Unfalls gemacht wurden, um die tatsächliche Unfallsituation zu beschreiben. Dies macht eine Ermittlung der Dosen, denen Einzelpersonen oder bestimmte Gruppen der Bevölkerung ausgesetzt waren, oftmals sehr schwer. Eine Möglichkeit, mit der Informationen über diese Dosen dennoch retrospektiv ermittelt werden können, stellt die Dosisrekonstruktion anhand von Umgebungsmaterialien und persönlich getragenen Materialien dar.

In der Strahlenschutzverordnung §§ 46 – 47 sind Grenzwerte für maximal zulässige Dosen festgelegt, in der Strahlenschutzverordnung § 48 ist im Rahmen der Umgebungsüberwachung die Bestimmung von „Ortsdosen nach einem festzulegenden Plan durch Messung“ vorgesehen. Da dies, sowie die Kontrolle der möglichen Überschreitung der Grenzwerte, in Fällen unkontrollierter Exposition nicht unbedingt durch reguläre Messungen gewährleistet sein kann, ist der Einsatz von alternativen Methoden erforderlich. Als alternative Methoden kommen Lumineszenz- und EPR-Verfahren (aus dem Engl.: electron paramagnetic resonance) in Betracht.

Ziel des vorliegenden Projektes ist es,

- die dosimetrischen Eigenschaften neuer, bisher nicht verwendeter Probenmaterialien für Lumineszenz- und EPR-Verfahren zu untersuchen,
- Lumineszenzverfahren anhand von grobkeramischem Baumaterialien weiterzuentwickeln und zu optimieren und
- die für die Umrechnung von absorbierten Dosen in Ortsdosen in Luft bzgl. eines Referenzpunktes notwendigen Konversionsfaktoren zu ermitteln.

Übergeordnetes Ziel dieser Arbeiten ist mithin, die Möglichkeiten der von der Strahlenschutzverordnung vorgesehenen Messungen zu verbessern.

Um dieses vorgegebene Ziel zu erreichen, wurde das gesamte Forschungsvorhaben in drei Teile gegliedert:

Im ersten Teil sollen Probenmaterialien untersucht werden, die betroffene Personen möglicherweise in der Unfallsituation mit sich führen könnten. Eine Dosisrekonstruktion anhand dieser Materialien würde einen Rückschluss auf die jeweilige Personendosis erlauben. Einzelne Probenmaterialien waren im Antrag des Forschungsvorhabens bereit ausgewählt. Zu ihnen zählen Perlmutterknöpfe, Cash-Chips von Kredit- oder Telefonkarten, für deutsche Population typische Zahnfüllungen, Tabletten und künstliche Rubine in Uhren. Ziel dieses Teils des Vorhabens ist, die dosimetrischen Eigenschaften in Bezug auf Lumineszenz- und EPR-Verfahren zu ermitteln.

Im zweiten Teil des Forschungsvorhabens sind Lumineszenzmethoden anhand von grobkeramischem Baumaterialien weiterzuentwickeln und die Messmethoden zu optimieren. Dies schließt die Standardisierung von Probenaufbereitungsverfahren und Testprogramme (z.B. Plateautest, Test auf Empfindlichkeit und Dosiswirkung), aufgrund derer optimierte Messprotokolle angewendet werden können, ein.

Im dritten Teil des Forschungsvorhabens sind durch Anwendung von Monte-Carlo-Simulationen des Photonentransportes Konversionsfaktoren für die Umrechnung der Dosis im Ziegelstein in die Dosis in Luft an einem Referenzpunkt zu bestimmen. Die Konversionsfaktoren hängen von der jeweiligen Quellenkonfiguration und -energie ab. Die Bestimmung der Konversionsfaktoren stellt somit eine wichtige Ergänzung zum zweiten Teil des Vorhabens dar.

## 2 Methodik

### 2.1 Herangehensweise

Bei Exposition gegenüber ionisierender Strahlung kommt es in Materie zu Ionisierungsprozessen. Dabei wird ein Teil der Strahlungsenergie in der Materie deponiert. Diese lässt sich – je nach Probenmaterial – durch Lumineszenz- oder EPR-Verfahren nachweisen und quantifizieren. Bei Anwendung von Lumineszenzverfahren wird die absorbierte Energie entweder durch Zuführung von Wärme oder durch Exposition gegenüber Licht geeigneter Wellenlänge freigesetzt. Ein Teil der freigesetzten Energie tritt in Form von Photonen auf. Über ihre Detektion kann auf die Dosis zurückgeschlossen werden.

Bei Zuführung von Wärme spricht man von Thermolumineszenz (TL), bei Exposition gegenüber Licht von optisch stimulierter Lumineszenz (OSL). OSL wird häufig nach der stimulierenden Wellenlänge bezeichnet, z.B. infrarot stimulierte Lumineszenz (IRSL). Als Messsignal werden im Fall von TL die freiwerdenden Photonen in Abhängigkeit der Materialtemperatur während des Heizvorganges aufgezeichnet („glowcurve“), im Fall von OSL in Abhängigkeit der verstrichenen Zeit seit Beginn der Stimulation („Ausleuchtcurve“).

Im Fall von EPR werden durch die Ionisierungsprozesse freie Radikale erzeugt, die das magnetische Moment der Gesamtprobe ändern. Diese Änderung ist abhängig von der Zahl der erzeugten Radikale und somit von der Dosis, der die Probe ausgesetzt war.

Mithilfe der genannten Methoden lassen sich Strahlendosen, hervorgerufen durch ionisierende Strahlung nachweisen und quantifizieren. Handelt es sich dabei um die in Baumaterialien (Ziegelsteinen) absorbierten Dosen, so hängt die für die weitere Ermittlung der Dosen, denen Einzelpersonen oder Bevölkerungsgruppen tatsächlich ausgesetzt waren, notwendige Dosis in Luft an einem Referenzpunkt von der jeweiligen Quellenkonfiguration und –energie ab.

Für die Umrechnung (Konversion) der „Ziegelsteindosis“ in die Dosis in Luft an einem Referenzpunkt ist die Kenntnis von Konversionsfaktoren nötig. Diese werden für eine Reihe

realistischer Expositionsszenarien unter Verwendung von Monte-Carlo-Simulationen des Photonenflusses berechnet.

Zudem kann aus einem Satz von Messungen von Strahlendosen für verschiedene Höhen über dem Untergrund am selben Gebäude oder den Tiefenprofilen der deponierten Dosis im Ziegelstein Information über die Quellenkonfiguration und die Quellenenergie gewonnen werden. Voraussetzung für eine derartige Analyse ist die Kenntnis des Dosisverlaufs über die Höhe bzw. die Kenntnis der Tiefenprofile für verschiedene Quellenenergien und spezifische Quellenkonfigurationen. Zur Gewinnung dieser Kenntnis wurden Monte-Carlo-Simulationen verwendet. Aus dem Vergleich des gemessenen Dosisverlaufs mit dem für bestimmte Quellenkonfigurationen und -energien berechneten Dosisverlauf lässt sich auf die tatsächlichen Quellenkonfigurationen und -energien rückschließen.

## **2.2 Verwendete „Werkzeuge“**

### 2.2.1 Lumineszenz-Messungen

Für sämtliche TL- und IRSL-Messungen wurde ein Messgerät des Typs „TL/OSL-DA 12“ der Firma Risø National Laboratories verwendet. Für die OSL-Messungen mit grüner Stimulation (GLSL = „*green light stimulated luminescence*“) fand ein zweites, baugleiches Gerät Verwendung. Das Gerät ist ausgestattet mit einem Heizelement, das für TL maximale Temperaturen bis zu 700°C und eine Heizrate bis zu 35°C / s zulässt. Für IRSL-Messungen ist es mit einem Satz IR-Dioden ausgestattet (Emission im Wellenlängenbereich  $\lambda = 800 - 950\text{nm}$  bei einer Leistung von ca. 40mW / cm<sup>2</sup> an der Probe). Das Lumineszenzlicht wurde nach Durchgang durch einen 4mm starken Breitbandfilter Schott BG38 (Transmissionsbereich  $\lambda = 320 - 650\text{nm}$ ) gemessen, um gestreutes IR-Stimulationslicht bei der Messung zu unterdrücken. Für die GLSL-Messungen kam das zweite Gerät zum Einsatz; es ist zur Stimulation mit einer Halogenlampe ausgestattet (Emission im Wellenlängenbereich  $\lambda = 440 - 560\text{nm}$ ). Das Lumineszenzlicht wurde nach Durchgang durch einen 4mm starken Breitbandfilters Hoya U-340 (Transmissionsbereich  $\lambda = 290 - 370\text{nm}$ ) gemessen, um

gestreutes grünes Stimulationslicht bei der Messung zu unterdrücken. Beide Geräte verfügen zum Applizieren von Dosen über je eine Beta-Quelle ( $^{90}\text{Sr}$ ; Dosisleistung im einen Fall ca. 20mGy / s, im anderen 50mGy / s).

Für weitere Bestrahlungen wurde die Bestrahlungseinrichtung „Gammatron“ des „Secondary Standard Dosimetry Laboratory“ (SSDL) der GSF benutzt; es handelt sich hier um eine offene Bestrahlungseinrichtung, die mit einer  $^{60}\text{Co}$  Quelle bestückt ist.

### 2.2.2 EPR-Messungen

Für die EPR-Messungen wurde das EPR Spektrometer vom Typ Bruker ECS 106 verwendet. Es ist ausgerüstet mit einer X-band Mikrowellenbrücke Typ ER 041 XG, einem Mikrowellenresonator Typ 4108 TMH und einem 6-Zoll Magneten Typ ER 070. Das Gerät arbeitet im X-Band Mikrowellenbereich von 9 – 10 GHz. Die Mikrowellenbrücke hat eine maximale Leistung von 200 mW. Der EPR Signalverstärker arbeitet mit einer fixen Magnetfeldmodulationsfrequenz von 50 kHz. Die Magnetfeldmodulationsamplitude betrug bei den durchgeführten Messungen 0.15 mT. Bei jeder Messung wurden jeweils 10 Einzelspektren aufaddiert. Das analoge EPR Signal wurde durch einen Tiefpass mit einer Zeitkonstante von 164 ms gefiltert und anschließend über einen Analog-Digital-Konverter (ADC) in 1024 Kanäle mit einer Konversionszeit von jeweils 82 ms eingelesen. Die resultierende Messzeit für jedes Einzelspektrum betrug 84 sec. Bei den Messungen wurde ein Magnetfeld von 5 mT überstrichen bei einer mittleren Magnetfeldstärke von 350 mT. Die Mikrowellenfrequenz betrug 9,8 GHz bei einer Mikrowellenleistung von 2,5 mW.

### 2.2.3 Die Monte Carlo Simulation des Photonentransportes

Die Monte-Carlo-Simulationen wurden unter Verwendung des SAM-CE-Codes durchgeführt. Dieser erlaubt die Simulation komplexer drei-dimensionaler Geometrien mithilfe einer „combinatorial geometry technique“. Gebäudestrukturen und Umgebung werden durch die

Zuweisung bestimmter Materialien definierter atomarer Zusammensetzung und Dichte zu gegebenen Raumzonen beschrieben. Der Photonentransport wird von einer gegebenen Quellenkonfiguration von gamma-strahlenden Radionukliden hin zum Ziegelstein simuliert, wobei die Simulation spektraler Photonenflüsse durch die „expected track length scoring method“ erreicht wird. Die Strahlendosen im Ziegelstein werden aus den spektralen Photonenflüssen unter Verwendung der für die Wechselwirkung von Photonen mit dem keramischen Material der Ziegel geeigneten Massenabsorptionskoeffizienten berechnet. Die Berechnungen legen eine Ziegelmauer von 20m Höhe sowie eine Ziegeldichte von  $1,8 \text{ g cm}^{-3}$  zugrunde.

### **3 Verwendbarkeit personengetragener Materialien zur Dosisrekonstruktion**

Um dem ersten Teil des Forschungsvorhabens nachzukommen, wurde eine Reihe von Probenmaterialien auf ihre dosimetrischen Eigenschaften bzgl. Lumineszenz- und EPR-Verfahren geprüft. Zu diesen Eigenschaften zählen die Linearität der Dosiswirkung, die Nachweisgrenze, die Eigenschaften möglicherweise vorhandener nicht-dosisabhängiger Signale („Nullsignal“), die Wiederholbarkeit von Messungen, die thermische Stabilität und die Wirkung möglicher Umgebungseinflüsse. Als mögliche Proben, die im Sinne der Zielsetzung häufig von Einzelpersonen körpergetragen sein sollten, wurden Cash-Chips in Kredit- oder Telefonkarten, für die deutsche Population typische Zahnfüllungsmaterialien (insgesamt 9 verschiedene Materialien), Perlmutterknöpfe, Medikamente und künstliche Rubine in Uhren getestet.

## 3.1 Chipkarten

Insgesamt wurden die Chips von mehr als 200 Telefonkarten, die ein privater Sammler zur Verfügung stellte, für die Untersuchungen herangezogen. Die Träger der Chips wurden im Dunkeln mitsamt der Schutzüberdeckung von den Telefonkarten entfernt und komplett zu den Lumineszenz-Messungen herangezogen. Untersucht wurden bis zum augenblicklichen Stand TL- und IRSL-Effekte. Beide konnten nur bei Chips mit transparenter Schutzüberdeckung wahrgenommen werden. Nur diese erlaubt dem emittierten Licht die Transmission von der strahlungsempfindlichen Schicht zur Messeinrichtung.

### 3.1.1 TL- und OSL-Eigenschaften von Chipkarten

Die Mehrzahl der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Chips zeigen ein starkes dosisunabhängiges TL-Signal, das nicht von dem dosisabhängigen Signal bei 190°C getrennt werden kann. Jüngst bestrahlte Chips zeigen zudem ein weiteres dosisabhängiges Signal bei 80°C mit verhältnismäßig kurzer Lebensdauer. Die Größe des dosisunabhängigen Nullsignals entspricht etwa 3 – 5 Gy des dosisabhängigen Signals. Es kann durch sehr langsames Heizen (Heizraten 2 °C / s) bis zu 225 °C eliminiert werden. Die Anwesenheit dieses starken Nullsignals in den Chips nimmt die Möglichkeit der Verwendung von TL. Die Herkunft dieses Nullsignals wird derzeit noch untersucht.

Auch bei Verwendung von IRSL tritt das Nullsignal auf, aber nur in einer Größe entsprechend 100 mGy. Aus diesem Grund wurden im Weiteren die dosimetrischen Eigenschaften der Chips ausschließlich unter Verwendung von IRSL untersucht. Zu den dosimetrischen Eigenschaften zählen vor allem die Dosiswirkung, die thermische Stabilität und die Reproduzierbarkeit des IRSL-Signals nach wiederholter Bestrahlung und IRSL-Stimulation. Die Ergebnisse sind im Folgenden zusammengefasst.

### 3.1.2 IRSL-Ausleuchtcurven und ihre thermische Stabilität

Typische IRSL-Ausleuchtcurven eines Chips sind in Abb. 1 dargestellt. Der Chip wurde zuvor mit 5,9 Gy bestrahlt. Gezeigt sind die Ausleuchtcurven sowohl bei Raum- als auch bei erhöhten Messtemperaturen und zudem mit und ohne Anwendung von Vorheizverfahren.

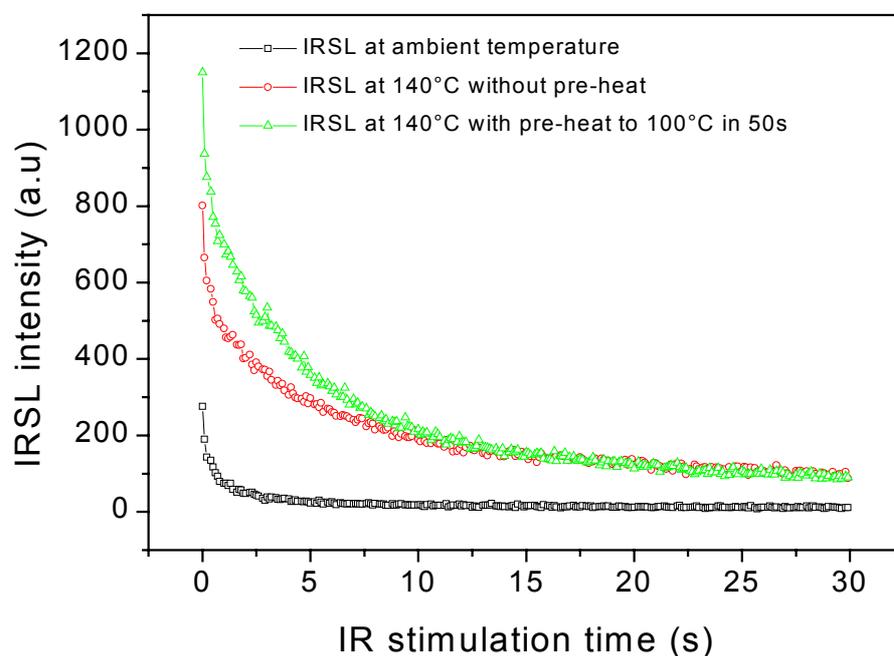
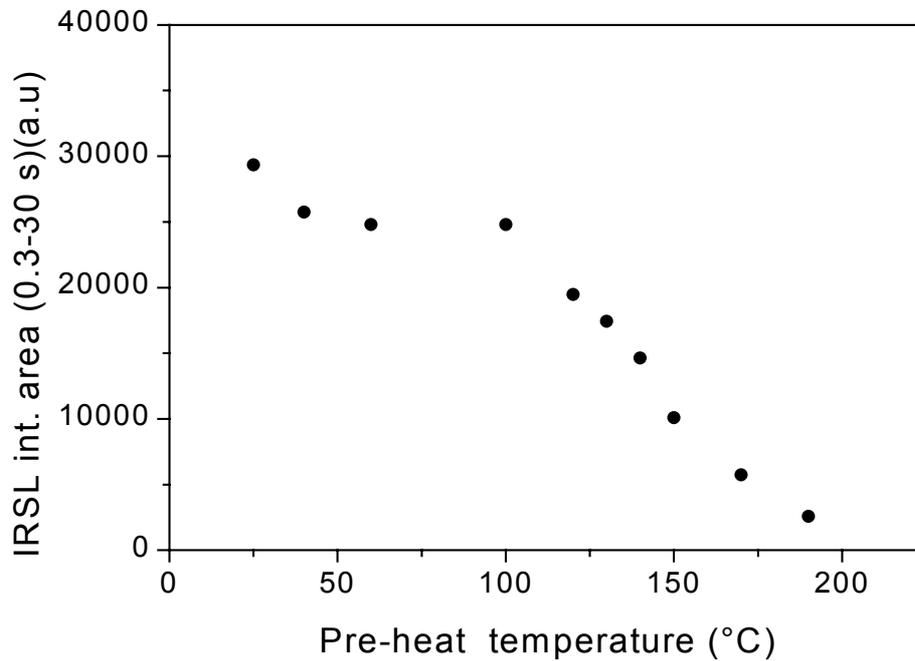


Abb. 1: IRSL-Ausleuchtcurven bei Raum- und erhöhten Messtemperaturen, mit und ohne Anwendung von Vorheizverfahren

Aus dem Vergleich der Ausleuchtcurven wird deutlich, dass der Signalverlauf ohne Anwendung von Vorheizverfahren relativ komplex ist und aus mindestens drei sich überdeckenden Einzelsignalen zusammensetzt.

Die durch verschiedene Vorheizverfahren bewirkte Veränderung des über die Ausleuchtdauer im Zeitbereich 0,3 s – 30 s integrierten IRSL-Signals ist in Abb. 2 gezeigt. Man erhält für Vorheiztemperaturen zwischen 50 °C und 125 °C ein sog. Vorheizplateau.



*Abb. 2: Vorheizplateau*

Dieses Ergebnis legt nahe, dass der verhältnismäßig stabile Teil der IRSL-Ausleuchtcurve mit dem Lumineszenzzentrum korrespondieren könnte, das für das TL-Maximum bei 190 °C verantwortlich ist.

Das nach Anwendung des Vorheizverfahrens (gleichmäßiges Heizen bis 100 °C während einer Zeitspanne von 50 s) verbleibende Signal der Chips ist bemerkenswert stabil. Dies gilt auch, wenn die Chipkarten bei einer erhöhten Temperatur von 40 °C bzw. von 60 °C aufbewahrt werden. Der entsprechende Zerfall des integrierten IRSL-Signals ist zusammen mit dem bei Lagerung der Chips bei 100 °C bzw. 120 °C in Abb. 3 dargestellt.

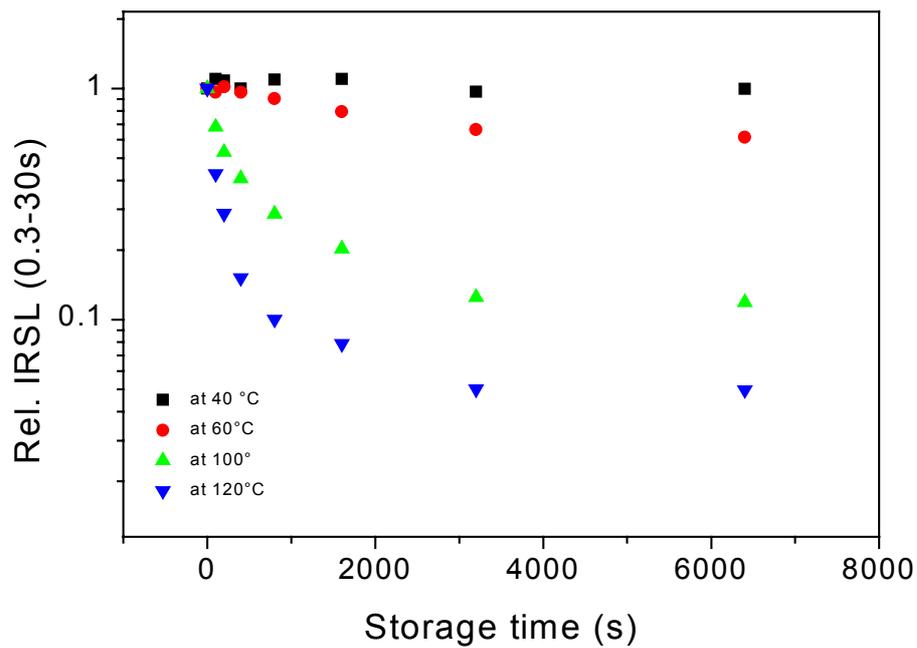
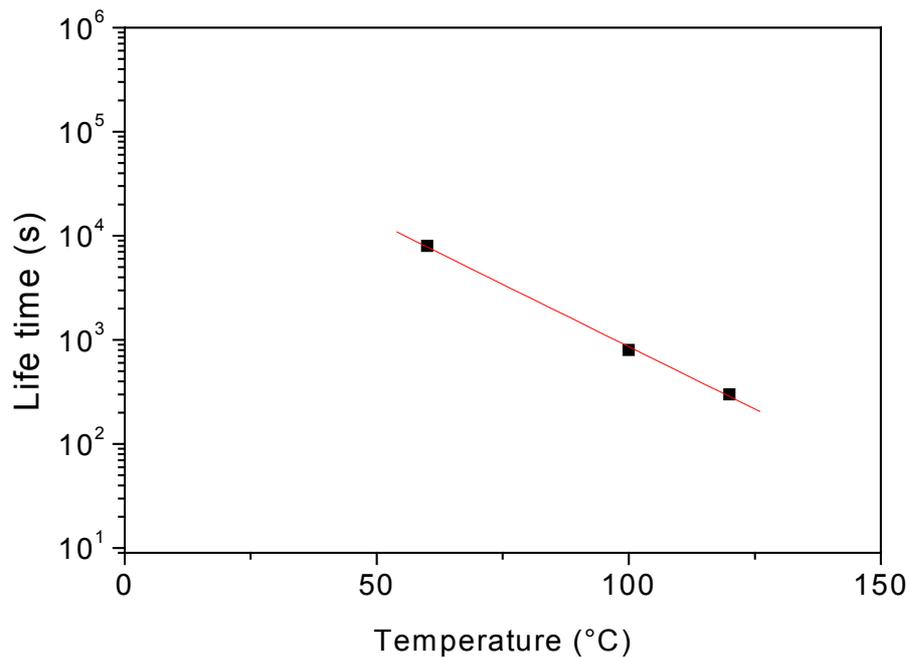


Abb. 3: Lebensdauer des IRSL-Signals bei unterschiedlichen Lagertemperaturen

Die Lebensdauer des Anregungszustandes, der für das IRSL-Signal als verantwortlich angenommen wird, ist somit 500 s bei einer Lagertemperatur von 120 °C und 1000 s bei einer Lagertemperatur von 100 °C. Daraus ergibt sich eine Lebensdauer von 2,5 Jahren bei Raumtemperatur (Abb. 4).

Allerdings zeigen die Ergebnisse auch, dass es eine weitere Komponente des Signals gibt, deren Lebensdauer noch zu bestimmen sein wird. Die IRSL-Ausleuchtcurven sowie die Dosiswirkung der Chips ähnelt stark den früher gefundenen Ergebnissen für Feldspat ([GÖKSU & BULUR, 1999], [NIEDERMAYER *et al.*, 1999]).

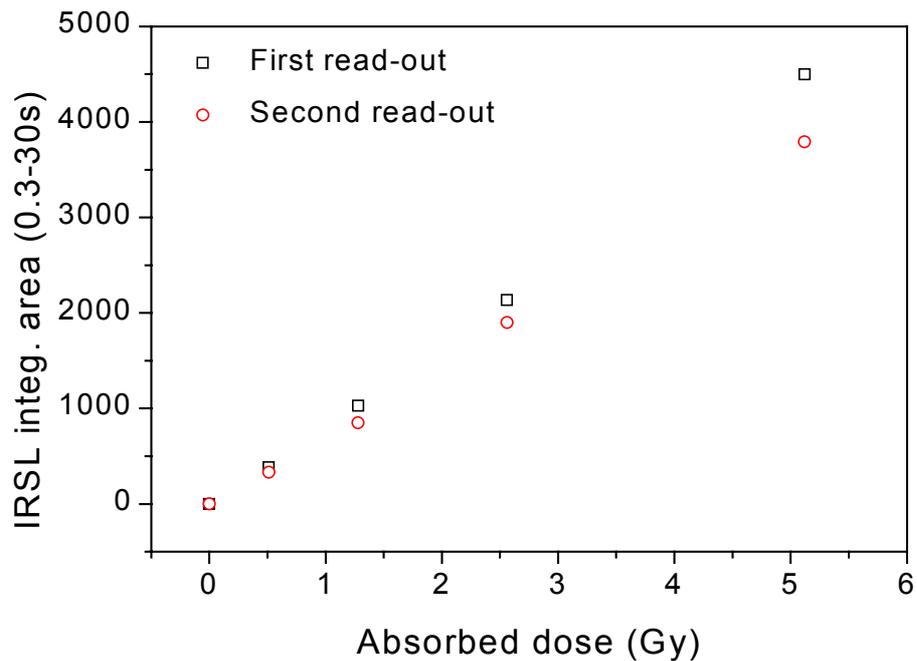
Auch zeigte sich ein Anstieg der Photonenausbeute mit ansteigender Messtemperatur. Ein ähnlicher Effekt wurde in früheren Veröffentlichungen bereits für Feldspäte beschrieben ([DULLER & WINTLE, 1991], [BAILIFF & BARNETT, 1994]). Im Fall der meisten der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Chips liegt die maximale IRSL-Empfindlichkeit bei einer Messtemperatur von 140 °C. Höhere Messtemperaturen während der IRSL-Messung löschen über die Zeitdauer der Messung das dosisabhängige Signal.



*Abb. 4: Abhängigkeit der Lebensdauer von der Lagertemperatur*

### 3.1.3 Dosiswirkung und Reproduzierbarkeit der Messergebnisse

Zur Bestimmung der Dosiswirkung wurden die Chips mit unterschiedlichen Dosen zwischen 0,25 Gy und 6 Gy bestrahlt. Um instabile Komponenten des IRSL-Signals zu löschen, wurden die Proben nach jeder Bestrahlung dem ermittelten Vorheizverfahren (gleichmäßiges Heizen bis 100 °C während einer Zeitspanne von 50 s) unterworfen. Die IRSL-Ausleuchtcurven wurden jeweils über eine Zeitspanne von 30 s aufgenommen. Die über diese Zeitspanne integrierten Signale sind in Abb. 5 dargestellt.



*Abb. 5: Dosiswirkungsverlauf für wiederholte Bestrahlung an derselben Probe*

Die Chips weisen linearen Dosiswirkungsverlauf auf. Die Messungen zeigen sich als reproduzierbar bei wiederholten Bestrahlungs-Mess-Zyklen, wobei keine höheren Dosen als 5 Gy angewandt wurden. Dies legt die Anwendbarkeit der Chips als individuelle Dosimeter unter Anwendung von Regenerationsverfahren nahe. Die Empfindlichkeit zeigt eine Abnahme von etwa 20 % nach dem ersten Bestrahlungs-Mess-Zyklus, bei dem Dosen größer 5 Gy angewandt wurden.

### 3.1.4 Zusammenfassung und Empfehlung

Cash-Chips von Chipkarten zeigen sich somit als ein für die Ermittlung von Individualdosen sehr geeignetes Material. Dies ist von großem Nutzen in der individuellen Unfalldosimetrie und könnte von kommerziellem Interesse für die Hersteller von Chipkarten werden.

Die erarbeiteten Ergebnisse beziehen sich allerdings nur auf eine Komponente des Gesamtsignals und auch nur auf einen Bestandteil der Chips. Eine Auswertung weiterer Komponenten sowie der Signale aus weiteren Bestandteilen könnte durchaus zu Messprotokollen führen, deren Messsignale sich dann durch längere Lebensdauern auszeichnen könnten und somit auch Dosisrekonstruktionen weiter in der Vergangenheit zurückliegender Ereignisse zuließen. Eine entsprechende Weiterarbeit wird empfohlen.

## **3.2 Zahnfüllungsmaterialien**

### **3.2.1 Beschreibung der möglichen Materialien**

Die Untersuchung von für deutsche Populationen typische Zahnfüllungsmaterialien zeigte zunächst, dass im Wesentlichen zwei Typen Bedeutung haben: Komposite<sup>1</sup> und Glasionomerzemente. Unter Kompositen versteht man organisches Material, das mit anorganischen Füllstoffen versetzt ist. Nach Füllung in die Kavität wird – in der Regel lichtinduziert – ein Polymerisationsprozess initiiert, wodurch die Füllung aushärtet. Bei Glasionomerzementen handelt es sich hingegen um ebenfalls mit Füllern – in diesem Fall Glas – versetzte Polykarbonsäuren, die nach Zugabe von Wasser innerhalb kurzer Zeit aushärten.

Unter der Produktgruppe der Kompositmaterialien ist eine Vielzahl verschiedener Produkte verschiedener Herstellerfirmen auf dem Markt und auch in Gebrauch. Aus dieser Produktgruppe wurde stellvertretend eine Gruppe von 8 verschiedenen Produkten untersucht. Aus der Produktgruppe der Glasionomerzemente ist das Produkt „Ketac Molar“ des Herstellers ESPE 3M für den deutschen Markt marktführend; die Glasionomere betreffenden Untersuchungen beziehen sich daher in der vorliegenden Arbeit auf Ketac Molar. Eine Liste sämtlicher untersuchter Proben ist in Tab. 1 aufgeführt.

---

<sup>1</sup> In der dentalmedizinischen Fachliteratur werden ein Teil der Füllungsmaterialien aus der Gruppe der Komposite noch weiter in „Kompomere“ und „Ormocere“ unterteilt.

Tab. 1: Untersuchte Probenmaterialien und deren Hersteller

<b>Materialname</b>	<b>Hersteller</b>
<i>Kompositmaterialien</i>	
Ariston	Vivadent (Lichtenstein)
Compoglass	Vivadent (Lichtenstein)
Definite	Degussa Dental (Deutschland)
Dyract	Degussa Dental (Deutschland)
Dyract AP	Degussa Dental (Deutschland)
Esthet	Degussa Dental (Deutschland)
Spectrum	Degussa Dental (Deutschland)
Surefil	Degussa Dental (Deutschland)
<i>Glasionomerzement</i>	
Ketac Molar	ESPE 3M (Deutschland)

Beide Materialgruppen zeigten bezüglich ihrer Lumineszenz-Eigenschaften generell unterschiedliches Verhalten. Die Lumineszenz-Eigenschaften innerhalb der Gruppe der Komposite scheint aber ähnlich. Zudem ist es einem Fachmann möglich, eine aus einer Kavität extrahierten Zahnfüllung einer der beiden Materialgruppen zuzuordnen. Handelt es sich dabei allerdings um lichtgehärtetes Kompositmaterial, ist in der Regel eine Bestimmung des einzelnen Produktes anhand einer aus einer Kavität extrahierten Zahnfüllung nicht mehr möglich. Eine nach der Materialgruppe getrennte Betrachtung ist mithin sinnvoll.

### 3.2.2 Probenaufbereitung

Zur Untersuchung wurden von allen Probenmaterialien einheitliche Plättchen von ca. 4mm Durchmesser und einer Stärke von 1mm mithilfe einer Schablone geformt und mittels einer zahnärztlichen Blaulichtquelle „3M Curing Light XL 3000“ polymerisiert. Die Plättchen

wurden jeweils als ganze untersucht. Die Vereinheitlichung der Proben bzgl. ihrer Erscheinungsform lässt einen direkten Vergleich der Proben zu.

Zur Messung an den Ketac-Molar-Proben wurden von ESPE 3M zur Verfügung gestellte Prüfkörper verwendet. Diese Prüfkörper werden von ESPE 3M zur Prüfung der Materialeigenschaften wie Brüchigkeit hergestellt. Es handelt sich um Quader mit einer Querschnittsfläche von 1mm x 1mm und einer Länge von 1,2cm. Die untersuchten Proben unterscheiden sich nach ihrer Glasionomerzement-Konzentrationen (1 : 2,5 und das gebräuchlichere Mischungsverhältnis von 1 : 2,8). Zudem wurden der Einfluss der Art der Aushärtung (Aushärtung in trockener Atmosphäre und in wassergesättigter Atmosphäre – dies spiegelt die Situation einer im Mund eines Patienten befindlichen Füllung wieder) sowie der Einfluss von Druck während des Aushärte-Vorgangs untersucht. Um diesen möglichen Einfluss zu ermitteln, wurde ein Teil der Proben während des Aushärtens in eine Schraubklemme gespannt.

### 3.2.3 Voruntersuchungen

Zunächst wurden für alle untersuchten Probenmaterialien die TL-Glowkurven aufgenommen und die Lage der TL-Maxima bestimmt. Es ergab sich dabei die in Tab. 2 aufgelistete Darstellung.

Da im Niedertemperaturbereich Signale mit nur kurzer Lebensdauer zu erwarten sind, schien die Wahl auf eine Vorheiztemperatur von 150 °C sinnvoll. Zudem wurde für Ketac Molar (Mischungsverhältnis 2,8, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und ohne Druckeinwirkung gehärtet) eine Reihe verschiedener Vorheiztemperaturen erprobt. Dazu wurde das Probenmaterial mit ca. 1 Gy bestrahlt und nach Einwirken von Vorheiztemperaturen zwischen 100°C und 200°C gemessen. Das Ergebnis ist in Abb. 6 dargestellt. Auch dieses legt die Wahl der Vorheiztemperatur von 150 °C nahe.

Tab. 2: TL-Eigenschaften: Lage der TL-Maxima

	Lage der Maxima der Glowkurve	
	Niedertemperaturbereich <sup>2</sup>	Hochtemperaturbereich <sup>3</sup>
Ariston	120°C	250°C
Compoglass	130°C	260°C
Definite	130°C	270°C
Dyract	120°C	210°C, 250°C
Dyract AP	130°C	210°C, > 300°C
Esthet	115°C	220°C, 250°C
Spectrum	115°C	210°C, 250°C
Surefil	110°C	210°C, 260°C
Ketac Molar (Mischungsverhältnis 2,8, trocken und ohne Druckeinwirkung gehärtet)	130°C	220°C
Ketac Molar (Mischungsverhältnis 2,8, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und ohne Druckeinwirkung gehärtet)	140°C	225°C
Ketac Molar (Mischungsverhältnis 2,5, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und mit Druckeinwirkung gehärtet)	140°C	220°C
Ketac Molar (Mischungsverhältnis 2,8, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und mit Druckeinwirkung gehärtet)	160°C	240°C

<sup>2</sup> Bestimmt mittels einer Heizrate von 2 °C / s; Proben: kompakt, 1 mm dick

<sup>3</sup> Bestimmt mittels einer Heizrate von 5 °C / s; Proben: kompakt, 1 mm dick

### Ketac Molar: Vorheizverfahren (normalisiert)

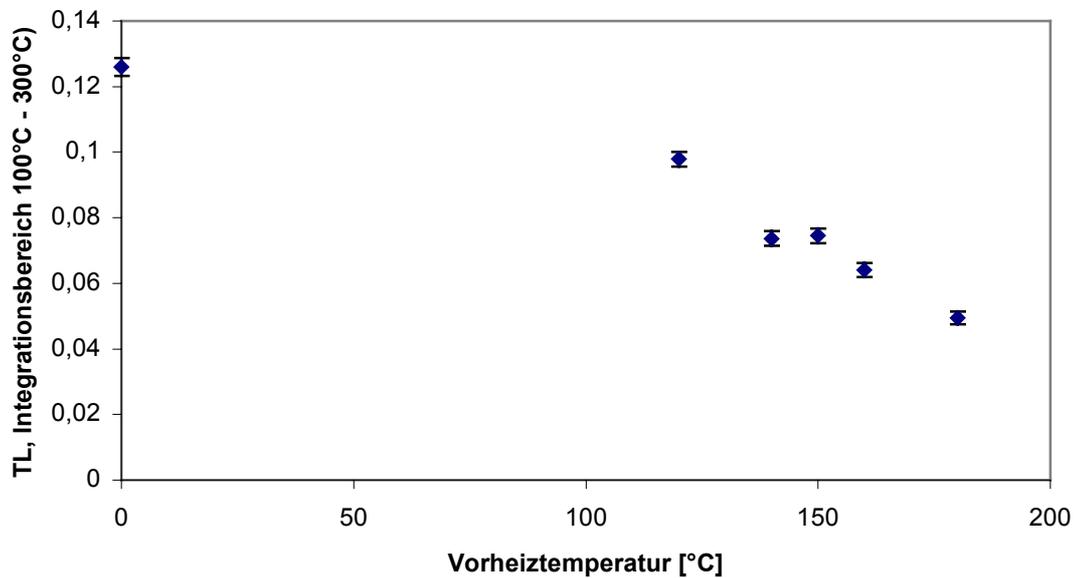


Abb. 6: Einfluss verschiedener Vorheiztemperaturen auf das Messsignal.

#### 3.2.4 TL-Eigenschaften: Dosiswirkung und Nullsignal

Zunächst wurden die Proben mit TL-Methoden untersucht. Um eine thermische Veränderung des Messmaterials zu verhindern, wurde als Maximaltemperatur 280°C bei einer Heizrate von 5°C / s gewählt. Es zeigte sich zudem, dass der Anteil der Glowkurven im Temperaturbereich < 200°C sehr kurzlebig ist (im Bereich einiger Stunden bis Tage). Aus diesem Grund wurde für alle Proben generell eine Vorheiztemperatur von 150°C bei einer Heizrate von 2°C / s gewählt. Zur Untersuchung des Dosis-Wirkungs-Verhaltens wurden die Proben der in dargestellten Messequenz ausgesetzt.

Tab. 3: Messsequenz zur Ermittlung des Dosis-Wirkungs-Verhaltens von Zahnfüllungsmaterialien (Probenbelegung: 1/13:Ariston; 2/14:Compoglass; 3/15:Definite; 4/16: Dyract; 5/17:Dyract AP; 6/18: Esthet; 7/19: Spectrum; 8/20:Surefil; 9/21: Ketac Molar mit Mischungsverhältnis 2,8, trocken und ohne Druckeinwirkung gehärtet; 10/22: Ketac Molar mit Mischungsverhältnis 2,8, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und ohne Druckeinwirkung gehärtet; 11/23: Ketac Molar mit Mischungsverhältnis 2,5, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und mit Druckeinwirkung gehärtet; 12/24: Ketac Molar mit Mischungsverhältnis 2,8, unter Wasser gesättigter Atmosphäre und mit Druckeinwirkung gehärtet)

Messlauf und Proben Nr.	Behandlung	Bemerkung
<b>Messlauf 1</b> Proben 1 - 12	Keine Bestrahlung Vorheizen bis 150°C (Heizrate: 2 °C/s),	
<b>Messlauf 2</b> Proben 1 - 12	Ausheizen bis 280°C (Heizrate: 5 °C/s)	
<b>Messlauf 3</b> Proben 1 - 12	Beta-Bestrahlung 0,39Gy Vorheizen bis 150°C (Heizrate: 2 °C/s),	Messung des Nullsignals
<b>Messlauf 4</b> Proben 1 - 12	Ausheizen bis 280°C (Heizrate: 5 °C/s)	
<b>Messlauf 5</b> Proben 1 - 12	Beta-Bestrahlung 0,78Gy Vorheizen bis 150°C (Heizrate: 2 °C/s),	
<b>Messlauf 6</b> Proben 1 - 12	Ausheizen bis 280°C (Heizrate: 5 °C/s)	
<b>Messlauf 7</b> Proben 13 - 24	Beta-Bestrahlung 3,12Gy Vorheizen bis 150°C (Heizrate: 2 °C/s),	
<b>Messlauf 8</b> Proben 13 - 24	Ausheizen bis 280°C (Heizrate: 5 °C/s)	
		Messung des Additivsignals

Durch Wiederholung der Messläufe 3 bis 8 wurde für die Proben 1 – 12 eine 2. Regeneration sowie für die Proben 13 – 24 eine 1. Regeneration aufgenommen. Abschließend wurde für alle Proben das Signal nach Ausheizen gemessen.

### 3.2.4.1 Ergebnis: Komposit-Materialien

Es ergab sich bei Auswertung der Glowkurven im Temperaturbereich von 150°C bis 260°C bei allen Proben für die Regenerationsmessungen im Dosisbereich von 0,39Gy bis 3,12Gy ein linearer Dosis-Wirkungs-Zusammenhang (Abb. 7).

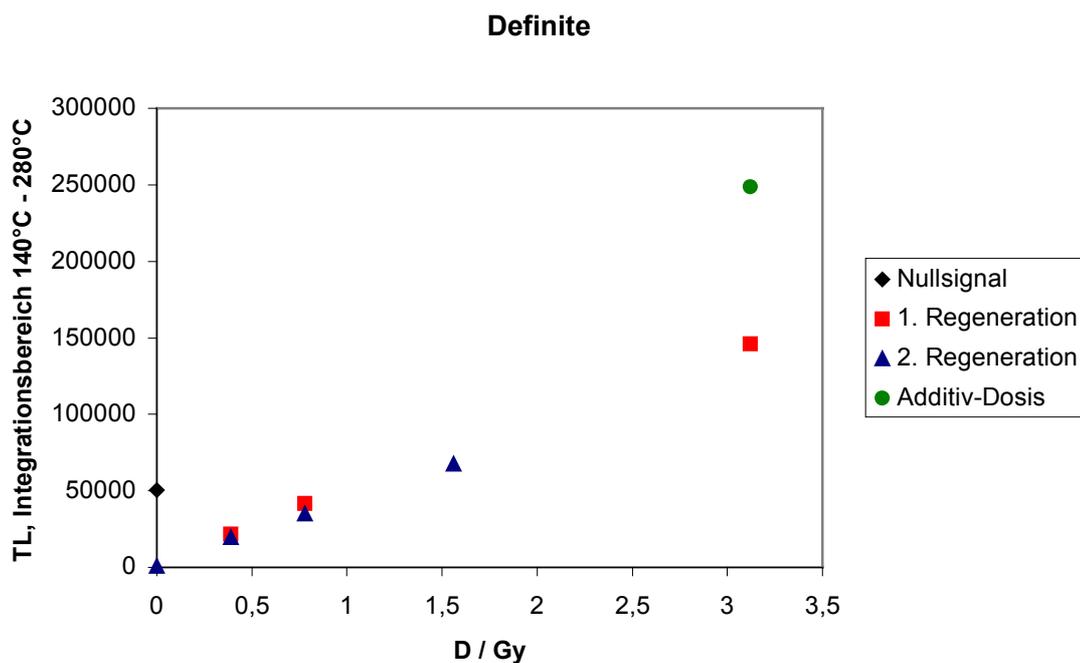


Abb. 7: Definite: Nullsignal und Dosiswirkung bei 1. und 2. Regeneration sowie Additiv-Messung

Allerdings zeigten auch alle untersuchten Proben ein nicht zu vernachlässigendes dosisunabhängiges Signal (Nullsignal) während der jeweils ersten Messung an einer Einzelprobe.

Die im Rahmen dieser Messungen festgestellten Nullsignale entsprechen den durch Bestrahlung induzierten Signalen von einigen Gy (vgl. Tab. 4).

Das Auffinden des linearen Dosis-Wirkungs-Zusammenhangs macht zwar die Dosisrekonstruktion möglich, jedoch steht einer quantitativen Auswertung das Vorhandensein eines Nullsignals generell im Wege, da in einem Anwendungsfall nicht unterschieden werden kann, welcher Anteil des gemessenen Signals dosisabhängig ist. Die Höhe des Nullsignals ist somit maßgeblich für die Nachweisgrenze.

Bei den vorliegenden Untersuchungen ist einzig beim Produkt „Definite“ das Nullsignal hinreichend klein, dass eine Bestimmung einer strahleninduzierten Dosis noch möglich ist. Da „Definite“ somit grundsätzlich die Potenz für die Anwendung in der Dosisrekonstruktion besitzt, wurde es mit einem Additiv-Verfahren mit einem Satz von acht Aliquoten untersucht. Es zeigte sich hierbei für „Definite“ ein Nullsignal von 0,7Gy und somit eine beschränkte Einsatzfähigkeit in der Dosisrekonstruktion.

Tab. 4: TL-Eigenschaften der Komposit-Materialien

	Äquivalentdosis des Nullsignals [Gy]	Anzahl der registrierten Photonen per Gy Dosis [1000/Gy]
Ariston	4,32	12
Compoglass	2,05	8
Definite	0,99	61
Dyract	1,81	14
Dyract AP	4,26	12
Esthet	2,79	8
Spectrum	2,08	17
Surefil	3,09	9

### 3.2.4.2 Ergebnis: Glasionomerzement

Das mithilfe der in beschriebenen Messsequenz gewonnene Ergebnis bzgl. des Glasionomerzements „Ketac Molar“ zeigt, dass im Gegensatz zu den Komposit-Produkten dieser von der Problematik eines Nullsignals frei ist. Die sich ergebenden Glowkurven sind in Abb. 8 dargestellt.

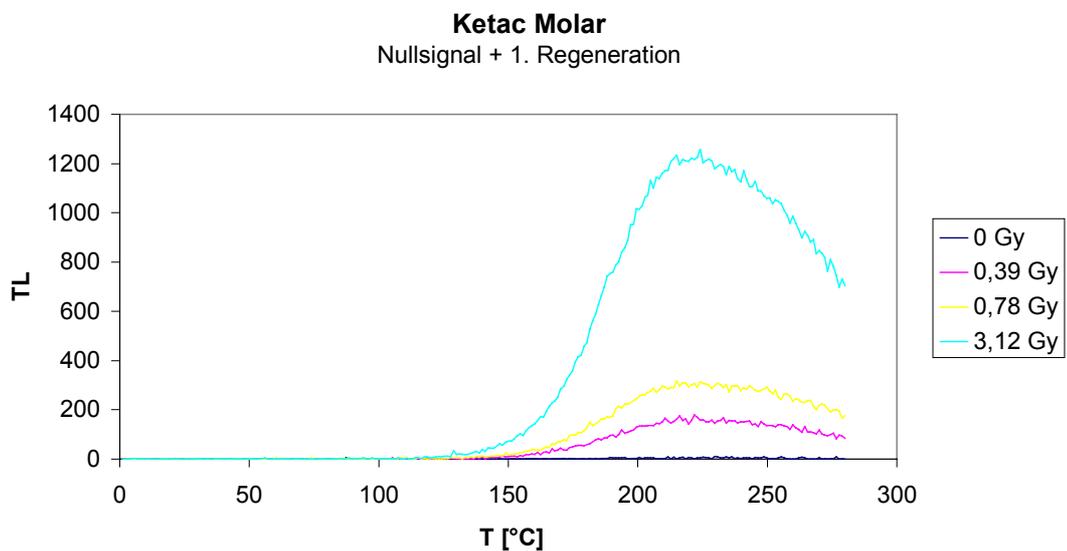


Abb. 8: Glowkurven: Nullsignal und 1. Regeneration

In Abb. 9 ist die resultierende Dosiswirkungskurve dargestellt. Es ergab sich dabei ein über den gesamten untersuchten Dosisbereich linearer Zusammenhang. Die daraus resultierende Nachweisgrenze liegt bei etwa 150 mGy.

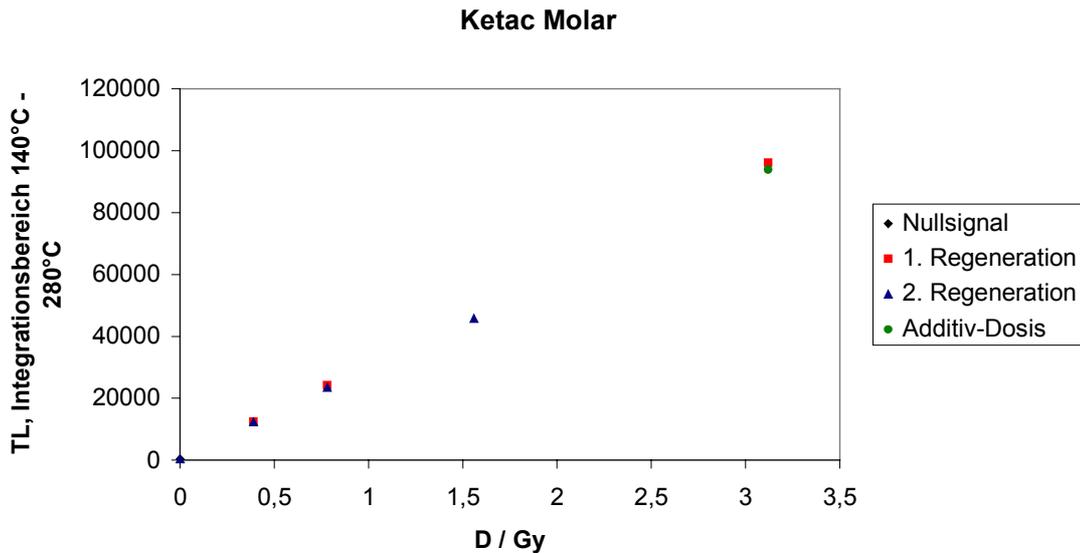


Abb. 9: Ketac Molar: Nullsignal und Dosiswirkung bei 1. und 2. Regeneration sowie Additiv-Messung

### 3.2.5 TL-Eigenschaften: Einfluss von Licht auf das Messsignal

Des weiteren war der Einfluss von Licht auf das Messsignal zu untersuchen. Dazu wurden sowohl bestrahlte Proben (2,4Gy) als auch unbestrahlte Proben unterschiedlich lange (zwischen 0 Stunden und 70 Stunden) UV-Beleuchtung ausgesetzt und dann nach Vorheizen bis hin zu 150°C innerhalb von 75s mit TL ( $T_{\max} = 280^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 56\text{s}$ ) gemessen.

#### 3.2.5.1 Ergebnis: Komposit-Materialien

Die Untersuchung des Messsignals auf den Einfluss von Licht ergab die in Abb. 10 dargestellte Abhängigkeit.

### Definite: Abhängigkeit von UV-Exposition

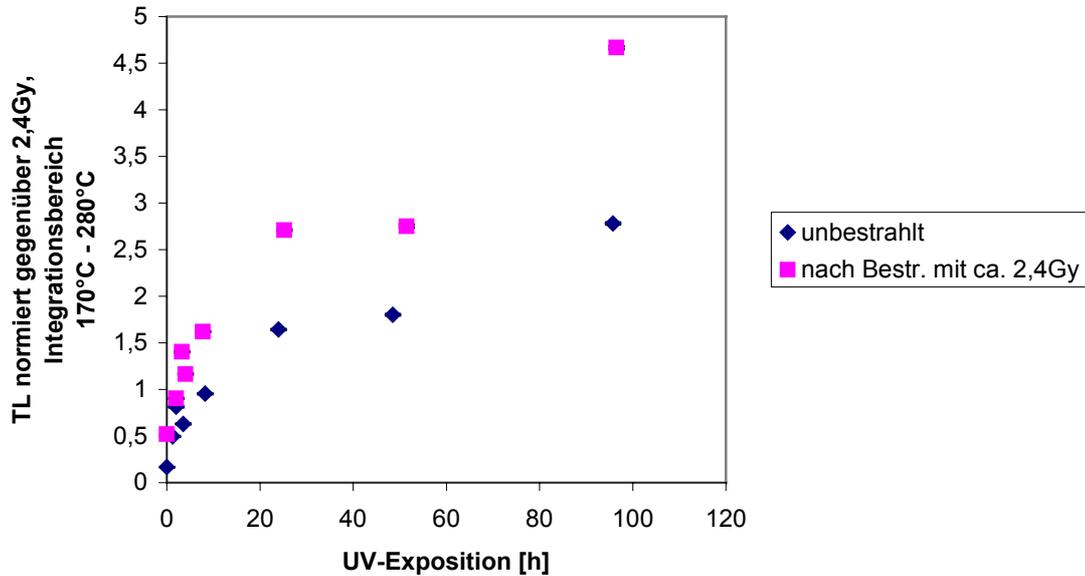


Abb. 10: Definite: Abhängigkeit des Messsignals von der Exposition gegenüber UV-Licht

Der physikalische Hintergrund des Signalverlaufs ist derzeit noch nicht geklärt. Es zeigt sich aber definitiv ein Einfluss. Da aber die Beleuchtung mit UV-Licht eine extreme Bedingung darstellt – extrem, was zum Einen die direkte Exposition gegenüber der Lichtquelle anbelangt (dies ist im Mund sicher nie gegeben), extrem aber auch was die Energie des Lichtes anbelangt –, ist noch zu prüfen, welche Bedeutung dieser Einfluss auf die Dosisrekonstruktion im Ereignisfall hat.

#### 3.2.5.2 Ergebnis: Glasionomerzement

Die Untersuchung des Messsignals auf den Einfluss von Licht ergab die in Abb. 11 dargestellte Abhängigkeit.

### Ketac Molar: Abhängigkeit von UV-Exposition

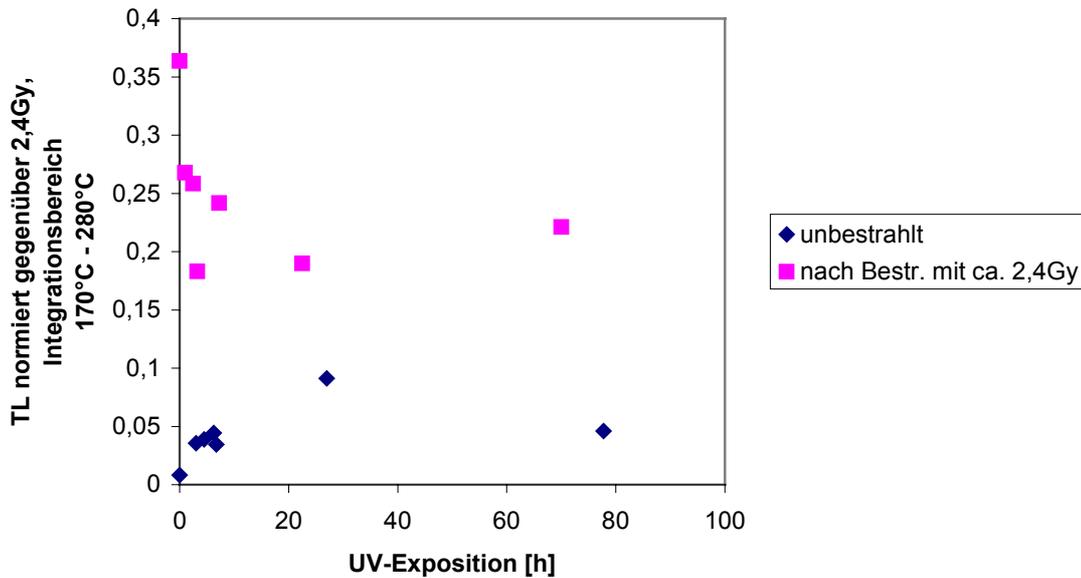


Abb. 11: Ketac Molar: Abhängigkeit des Messsignals von der Exposition gegenüber UV-Licht

Auch in diesem Fall ist der physikalische Hintergrund des Signalverlaufs noch nicht geklärt. Es zeigt sich aber auch hier ein Einfluss, der allerdings einen anderen Verlauf als im Fall von „Definite“ nimmt. Die Bedeutung dieses Einflusses auf die Dosisrekonstruktion im Ereignisfall ist noch zu prüfen.

### 3.2.6 OSL-Messungen

Das Problem des Nullsignals ergab sich allerdings generell bei Verfahren, die ein Heizen der Proben erforderlich machen: Da sich bei den Untersuchungen mittels IRSL für eine Messung bei Raumtemperatur generell zu geringe Empfindlichkeit zeigte, wurde für die Möglichkeit der IRSL-Messung bei erhöhten Temperaturen untersucht. Auch in diesem Fall konnte ein erhebliches Nullsignal festgestellt werden. Aus diesem Grund, sowie aufgrund der Tatsache, dass die sich ergebende Ausleuchtcurve auf einen komplexen Verlauf aufwies,

dessen physikalischer Hintergrund nicht geklärt werden konnte, wurde von einer weiteren Verfolgung dieses Messverfahrens abgesehen.

Die Untersuchungen für „Ariston“ mit GLSL waren zwar frei von der Problematik eines Nullsignals, jedoch lag die Lebensdauer des Signals nur im Bereich von Stunden; eine Anwendung in der Dosisrekonstruktion ist somit nicht gegeben.

### 3.2.7 Zusammenfassung und Empfehlung

Zahnfüllungen aus Glasionomerzement scheinen somit für die Ermittlung von Individualdosen ein vielversprechendes Material zu sein, was bei der Gruppe der Komposite nur für Ausnahmen gilt. Dennoch sind noch wichtige Frage zu klären. Dazu gehört die Lebensdauer des Signals insbesondere unter Einwirkung von Licht sowie der Einfluss von Röntgenstrahlung auf das Signal. Weiterhin sind die Ergebnisse an authentischen Proben, d.h. tatsächlichen, durch Zahnärzte von Patienten extrahierten Füllungen zu prüfen. Diese Untersuchungen sind unerlässlich, um ein standardisiertes Messprotokoll ermitteln zu können. Eine entsprechende Weiterarbeit wird empfohlen.

## 3.3 Perlmutterknöpfe, Medikamente und künstliche Rubine in Uhren

Als weitere Probenmaterialien wurden Perlmutterknöpfe, Medikamente (Schmerzmittel, Herztabletten und Spurenelementmedikamente) und künstliche Rubine aus Uhren herangezogen.

### *Perlmutterknöpfe:*

Eine Auswahl verschiedener Perlmutterknöpfe (ca. 20 Stück) wurde mit TL- und EPR-Methoden untersucht. Dazu wurden ganze Knöpfe oder Bruchstücke ganzer Knöpfe im SSDL der GSF Gammastrahlung exponiert ( $^{60}\text{Co}$ ). Für die TL-Messung wurden die Proben dann bis

zu einer Maximaltemperatur von 300°C (Heizrate 5°C / s) geheizt. Zwar konnte ein dosisabhängiges Signal nachgewiesen werden, wobei die Nachweisgrenze bei Werten zwischen 0,5Gy und 3 Gy lag, jedoch zeigte sich auch ein starkes Nullsignal, das es nicht gelang zu unterdrücken.

Da Perlmutter aus verschiedenen Schichten besteht, wurde geprüft, ob durch entsprechende chemische Aufbereitung dieses Nullsignal unterdrückt werden kann. Ein geeignetes Verfahren konnte nicht ermittelt werden.

#### *Medikamente:*

Bei den Medikamenten, die in einer Unfallsituation für die Dosisrekonstruktion zur Anwendung kommen könnten, handelt es sich generell um solche, die Einzelpersonen ggf. mit sich führen. Zu diesen zählen im Wesentlichen Schmerzmittel, Herztabletten und Spurenelementtabletten. In der vorliegenden Arbeit wurde aus der Gruppe der Schmerztabletten „Aspirin“ (Hersteller: Bayer AG, Leverkusen, Deutschland) und „Paracetamol-ratiopharm 500“ (Hersteller: Ratiopharm GmbH, Ulm, Deutschland), aus der Gruppe der Herztabletten „Nifedipin-ratiopharm SL“ (Hersteller: Ratiopharm GmbH, Ulm, Deutschland) sowie aus der Gruppe der Spurenelementmedikamente „Diasporal“ (Hersteller: Protina Pharma GmbH, Ismaning, Deutschland) mit IRSL, GLSL und EPR untersucht. Dazu wurden die Proben pulverisiert und im SSDL der GSF Gammastrahlung exponiert (<sup>60</sup>Co). Für die IRSL- und GLSL-Messungen wurden die bestrahlten Proben jeweils 30s mit Licht der jeweiligen Wellenlänge bei Raumtemperatur beleuchtet.

Ein dosisabhängiges Signal konnte in keinem Fall nachgewiesen werden.

#### *Künstliche Rubine aus Uhren:*

Künstliche Rubine aus Uhren (17 Stück) wurden mit TL und IRSL untersucht. Die Proben wurden mit der im TL/OSL-Messgerät eingebauten Betaquelle bestrahlt. Für die TL-Messung wurden die Proben dann bis zu einer Maximaltemperatur von 300°C (Heizrate 5°C / s) geheizt; für die IRSL-Messung wurden die Proben 30s bei einer Messtemperatur von 140°C beleuchtet.

Ein dosisabhängiges Signal konnte in keinem Fall mit den verwendeten Proben und den zum Zeitpunkt der Messung vorhandenen Messmöglichkeiten nachgewiesen werden. Allerdings ist aus früheren Studien bekannt, dass bei Verwendung konventioneller TL/OSL-Messgeräte künstliche Rubine ein dosisabhängiges Signal zeigen, wenn eine Mindestmenge von ca. 10 mg untersucht werden kann. An der GSF wurde kürzlich eine Weiterentwicklung der konventionellen Geräte installiert, das sich durch eine „single-grain-laser“-Erweiterung auszeichnet. Die Messempfindlichkeit dieser Erweiterung ist deutlich höher. Aus diesem Grund könnte die Dosisrekonstruktion anhand von künstlichen Rubinen unter Verwendung der weiterentwickelten Version der konventionellen Messapparatur dennoch möglich sein.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich keines der hier getesteten Probenmaterialien zur Dosisrekonstruktion mittels Lumineszenz- bzw. EPR-Verfahren unter Verwendung konventioneller Messgeräte im im Ereignisfall interessierenden Dosisbereich von bis zu einigen Gy eignet.

## **4 Entwicklung von Optimierte Messprotokollen für die Dosisrekonstruktion an Baumaterialien mithilfe von Lumineszenzverfahren**

Zur Erfüllung des zweiten Teils des Vorhabens wurden TL-Methoden anhand von Ziegelmaterial durch Variation aller im Zuge der Dosisermittlung auftretender Parameter unter Berücksichtigung der natürlichen Varianz der möglichen Probenmaterialien hinsichtlich ihrer mineralogischen Zusammensetzung optimiert.

Die Dosisrekonstruktion anhand von Baumaterialien unter Verwendung von Lumineszenz-Methoden beinhaltet eine Vielzahl von Einzelschritten. So beginnt das Verfahren mit der Probenahme und führt über die geeignete Probenpräparation zur Bestimmung der Strahlendosen im Baumaterial, die schließlich mithilfe von Konversionsfaktoren in die Dosis in Luft an einem Referenzpunkt umgerechnet werden. Die Kenntnis der Dosis in Luft an einem Referenzpunkt erlaubt es, Kollektivdosen für die Bevölkerung bzw. Gruppen von Personen zu ermitteln. Es muss betont werden, dass es kein für alle Baumaterialien gültiges Standardverfahren geben kann. Dies liegt in der natürlichen Varianz der mineralogischen Zusammensetzung grobkeramischer Materialien wie z.B. Ziegel. Für die Optimierung von Verfahren sind stets die jeweiligen Lumineszenz-Eigenschaften (z.B. Empfindlichkeit, thermische Stabilität) sowie die Linearität der Dosiswirkung in dem interessierenden Dosisbereich zu prüfen.

In dem vorliegenden Vorhaben wurden verschiedene Messverfahren entwickelt, um die Tauglichkeit eines Probenmaterials in Hinblick auf die Dosisrekonstruktion innerhalb eines gegebenen Dosisbereichs zu testen. Die entwickelten Testprogramme geben dem Anwender Richtlinien für die Wahl der geeignetsten Messparameter für Lumineszenz-Messungen und die Ermittlung der Strahlendosen.

Die erarbeiteten Messprotokolle sind im Anhang aufgeführt.

## 5 Monte-Carlo-Simulationen zur Unterstützung der Bestimmung externer Strahlendosen mit Lumineszenz-Verfahren

### 5.1 Vorbemerkung

Um Personendosen, bzw. kumulative Dosen, die durch externe Gamma-Bestrahlungen hervorgerufen wurden, rekonstruieren zu können, ist eine Reihe von Vorinformationen nötig. Diese können die Dosis in Luft an einem Referenzpunkt, gewöhnlich die Dosis in 1 m Höhe über offenem, ungestörtem Rasengelände sein, wie auch die Dosis in Luft an bestimmten typischen Aufenthaltsorten der Personen oder Personengruppen, für die die Dosisrekonstruktion durchgeführt werden soll. Da Lumineszenzmessungen in Ziegelsteinen dazu geeignet sind, anthropogene Strahlendosen im Ziegel an einem definierten Probenort nachweisen und quantifizieren zu können, ist die Kenntnis von Bezugsgrößen dieser „Ziegelsteindosen“ zur Dosis in Luft an geeigneten Referenzpunkten notwendig. Eine rechnerische Herangehensweise, welche auf einer Monte-Carlo-Simulation des Photonenflusses beruht, erlaubt es, Konversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlendosen in Luft für eine gegebene Quellenkonfiguration sowie für eine gegebene Umgebung des Probenortes aus den Ziegelsteindosen zu bestimmen. Konkret wurden die Monte-Carlo-Simulationen dazu verwendet, um

- die Konversionsfaktoren zur Berechnung der Ziegelsteindosis in die Strahlendosis in Luft an einem Referenzpunkt für verschiedene Quellenenergien zu bestimmen, und zwar zum Einen für den Fall der Exposition durch Strahlung aus einer halbenendlichen Wolke, zum Anderen für den Fall am Boden gleichmäßig deponierter Radionuklide,
- die Abhängigkeit der Konversionsfaktoren von der Tiefenverteilung der deponierten Radionuklide im Boden zu untersuchen und um
- Konversionsfaktoren sowohl für die unmittelbare Umgebung des Probenortes als auch für eine Referenzposition bei verschiedenen räumlich heterogenen Kontaminationsmustern zu berechnen.

Zudem kann aus einem Satz von Berechnungen anthropogener Strahlendosen für verschiedene Höhen über dem Untergrund am selben Gebäude und den Tiefenprofilen der deponierten Dosis im Ziegelstein Information über die Quellenkonfiguration und die Quellenenergie gewonnen werden. Voraussetzung für eine derartige Analyse ist die Kenntnis des Dosisverlaufs über die Höhe oder der Tiefenprofile für verschiedene Quellenenergien und spezifische Quellenkonfigurationen. Zur Gewinnung dieser Kenntnis wurden Monte-Carlo-Simulationen verwendet, um

- die absorbierte Dosis in Ziegeln in Abhängigkeit von der Höhe des Probenortes über dem Boden für verschiedene Quellenkonfigurationen zu untersuchen und um
- die Berechnung der Tiefenprofile auf Strahlung aus einer halbunendlichen Wolke und für unterschiedliche Quellenenergien auszudehnen und die Abhängigkeit der Tiefenprofile der absorbierten Dosen im Ziegelstein von der Tiefenverteilung der deponierten Radionuklide im Boden zu untersuchen.

## **5.2 Konversionsfaktoren für die Berechnung der Dosen von Strahlung aus radioaktiven Wolken sowie von am Boden deponierten Radionukliden**

Mit Monte-Carlo-Simulationen des Photonentransportes durchgeführte Berechnungen von Konversionsfaktoren für die Umrechnung der Ziegelsteindosis in die Dosis in Luft an einem Referenzpunkt wurden für Strahlung aus einer halbunendlichen Wolke bzw. für Strahlung von am Boden gleichmäßig deponierten Radionukliden durchgeführt. Für die Berechnung wurde eine Probenentnahme in einer Höhe von 1 m bzw. von 10 m angenommen und Konversionsfaktoren für verschiedene Schichttiefen im Ziegelstein ermittelt. Die für verschiedene Quellenenergien berechneten Konversionsfaktoren sind in den Tabellen Tab. 5 und Tab. 6 aufgeführt.

Tab. 5: Konversionsfaktoren zur Berechnung der Dosis in Luft an einem Referenzpunkt aus der Ziegelsteindosis, ermittelt für Gammastrahlung aus einer halbinendlichen radioaktiven Wolke bei verschiedenen Quellenenergien

Höhe der Probennahme (m)	Schichttiefe im Ziegelstein (cm)	Quellenenergie (keV)			
		140	364	662	1600
1	0 - 1	1,13	1,58	1,74	1,93
	1 - 2	1,76	2,12	2,20	2,33
10	0 - 1	0,87	1,25	1,43	1,68
	1 - 2	1,36	1,70	1,84	2,05

Tab. 6: Konversionsfaktoren zur Berechnung der Dosis in Luft an einem Referenzpunkt aus der Ziegelsteindosis, ermittelt für Gammastrahlung von bis zu einer Entfernung von 200 m gleichmäßig auf dem Boden deponierten Radionukliden verschiedener Quellenenergien

Höhe der Probennahme (m)	Schichttiefe im Ziegelstein (cm)	Quellenenergie (keV)			
		140	364	662	1600
1	0 - 1	1,04	1,64	1,82	1,96
	1 - 2	1,33	1,95	2,13	2,22
10	0 - 1	1,60	2,77	3,22	3,57
	1 - 2	2,32	3,44	3,85	4,17

Trotz der Abschirmung innerhalb der Ziegelmauer sind die Konversionsfaktoren für die vorderste Schicht im Ziegelstein bei einer Berechnung für eine Probennahme in 1 m Höhe generell etwas kleiner als der Wert 2, den man aus rein geometrischen Erwägungen aufgrund der Abschirmung eines Halbraumes durch die Ziegelmauer selbst erwarten würde. Dies liegt hauptsächlich an den größeren Werten der Massenabsorptionskoeffizienten für Ziegelsteine. Dieser Effekt tritt besonders bei der niedrigsten berechneten Quellenenergie von 140 keV auf.

Die Konversionsfaktoren variieren nennenswert mit der Schichttiefe im Ziegelstein. Dies unterstreicht die Notwendigkeit der präzisen Angabe der Schichttiefe im Ziegelstein, aus der die untersuchte Probe genommen wird.

Für die oft verwendete Höhe von 1 m für die Probennahme weisen die Konversionsfaktoren für die beiden betrachteten Quellenkonfigurationen keine signifikanten Unterschiede auf. Für eine Probennahme in der Höhe von 10 m sind die Konversionsfaktoren für auf dem Boden deponierte Radionuklide gegenüber denen für Wolkenstrahlung etwa um einen Faktor 2 größer.

Die Abhängigkeit von der Höhe der Probennahme ist signifikant. Dies gilt insbesondere für die Betrachtung auf dem Boden deponierter Radionuklide. Bei einer Probennahme in einer Höhe von 10 m zeigen die Konversionsfaktoren bei einer angenommenen Quellenkonfiguration von auf dem Boden deponierten Radionukliden für die höheren Quellenenergien deutlich größere Werte als 2. Dies liegt hauptsächlich an der Abnahme der absorbierten Dosis mit der Höhe bei dieser Quellenkonfiguration.

Die Radionuklide dringen mit der Zeit in den Boden ein; dies gilt umso mehr bei nasser Deposition, bei der ein Eindringen mit der Deposition einhergeht. Die dann in einem Ziegelstein festgestellte Dosis korrespondiert mit der über die Zeitspanne seit der Deposition gemittelten Tiefenverteilung der Radionuklide im Boden und der damit einhergehenden erhöhten Abschirmung durch den Boden selbst. Die unter der Annahme einer bis hin zu verschiedenen Tiefen im Boden gleichmäßigen Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  mit Monte-Carlo-Verfahren ermittelten Konversionsfaktoren sind in Tab. 7 aufgelistet. Dabei wird vorausgesetzt, dass die in Luft absorbierte Dosis am Referenzpunkt von derselben Tiefenverteilung der Radionuklide im Boden herrührt. Wie man Tab. 7 entnehmen kann, liegt für eine Probeentnahme in einer Höhe von 1 m nur eine geringfügige Abhängigkeit der Konversionsfaktoren von der Eindringtiefe der Radionuklide im Boden vor, während für eine Probeentnahme in einer Höhe von 10 m bei Eindringen der Radionuklide hin zu größeren Tiefen eine signifikante Reduktion der Konversionsfaktoren zu verzeichnen ist.

Tab. 7: Konversionsfaktoren zur Berechnung der Dosis in Luft an einem Referenzpunkt aus der Ziegelsteindosis, ermittelt für Gammastrahlung von auf dem Boden deponiertes bzw. bis hin zu der angegebenen Tiefe im Boden homogen verteiltes  $^{137}\text{Cs}$  (Quellenenergie: 662 keV)

Höhe der Probennahme (m)	Schichttiefe im Ziegelstein (cm)	Eindringtiefe von $^{137}\text{Cs}$ in den Boden bis hin zu einer Tiefe von			
		0 g cm <sup>-2</sup> (Deposition auf dem Boden, kein Eindringen)	1 g cm <sup>-2</sup>	5 g cm <sup>-2</sup>	30 g cm <sup>-2</sup>
1	0 - 1	1,82	1,77	1,75	1,73
	1 - 2	2,13	2,10	2,11	2,16
10	0 - 1	3,22	2,51	2,16	2,01
	1 - 2	3,85	3,04	2,67	2,55

### 5.3 Konversionsfaktoren für räumlich heterogene Deposition der Radionuklide bzw. bei Kontamination der Ziegelmauer

Bei einer räumlich heterogenen Verteilung der Radionuklide auf einer offenen Fläche vor einer Ziegelmauer, der die Proben entnommen wurden, sind die Konversionsfaktoren sehr vom Muster der Deposition abhängig. Ein typisches Beispiel einer solchen heterogenen Verteilungen ist eine im Bereich direkt vor der betrachteten Ziegelmauer erhöhte Flächenaktivität. Eine solche kann durch die Akkumulation von auf einem Hausdach deponierten, vom Regen ausgeschwemmten und vom Hausdach abgetropften Radionukliden entstehen. Darüber hinaus können die Konversionsfaktoren durch eine Kontamination der Mauer selbst beeinflusst werden.

Für die Berechnung von Konversionsfaktoren für verschiedene Kontaminationsmuster wurden Monte-Carlo-Simulationen benutzt. Dafür wurde für die Probennahme eine 3 m hohe und 10 m breite Wand eines kleinen Gebäudes angenommen und ein Gitter auf der Fläche vor dieser Wand definiert, dessen Gitterflächen Regionen unterschiedlicher Konzentration von Radionukliden festlegen. In jeweils unterschiedlichen Berechnungen für jedes dieser

Quellgebiete wurden sowohl die Strahlendosen in verschiedenen Schichttiefen im Ziegelstein als auch die Dosen in Luft in unterschiedlicher Entfernung vom Ort der Probenahme berechnet. Dabei wurden als mögliche Szenarien auf dem Boden deponierte Radionuklide und Radionuklide, die bis hin zu verschiedenen Eindringtiefen in den Boden eingedrungen sind, betrachtet, wobei das Eindringverhalten in jedem Gitterfeld unterschiedlich sein kann. Zudem wurde die Möglichkeit der Kontamination der Wand selbst vorgesehen. Für ein gegebenes Kontaminationsmuster wurden die Konversionsfaktoren durch Kombination der Ergebnisse für die verschiedenen Gitterfelder und für die Wandkontamination erhalten.

In Tab. 8 sind für verschiedene Kontaminationsmuster am und im Boden vor der Ziegelmauer „lokale“ Konversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlendosis in Luft, gemittelt über einen Abstand von 10 m bzw. von 25 m vom Ort der Probenahme sowie die Konversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlendosis in Luft bezüglich eines Referenzpunktes aufgelistet. Ebenfalls in Tab. 8 dargestellt sind die Konversionsfaktoren, die sich ergeben, wenn eine Kontamination der Wand selbst berücksichtigt wird, wobei die Flächenaktivität auf der Wand 10% der Flächenaktivität auf dem Boden beträgt. Man kann aus Tab. 8 ersehen, dass:

- Für räumlich heterogene Verteilung der Radionuklide ist keine starke Abhängigkeit der Konversionsfaktoren von der Eindringtiefe der Radionuklide im Boden nachzuweisen und aufgrund der Abschirmung durch die Wand sind die lokalen Konversionsfaktoren nahe dem Probenort kleiner als der Wert des Konversionsfaktors bezüglich des Referenzpunktes.
- Im Fall erhöhter Aktivität im Bodenbereich nahe der Probenahmestelle an der Wand sind die Konversionsfaktoren kleiner als bei homogener Verteilung und die Unterschiede zwischen den lokalen Konversionsfaktoren nahe dem Probenort und dem Konversionsfaktor bezüglich des Referenzpunktes sind gering, was an der Kompensation der Abschirmung der Wand durch die erhöhte Aktivität direkt vor der Wand liegt.
- Im Fall reduzierter Aktivität im Bodenbereich nahe der Probenahmestelle an der Wand sind die Konversionsfaktoren größer als bei homogener Verteilung. Die lokalen Konversionsfaktoren nahe dem Probenort wachsen mit der Entfernung von der Wand.

Tab. 8: Konversionsfaktoren zur Berechnung der Strahlendosis in Luft gemittelt bis zu einen Abstand von 10 m und 25 m von der Wand sowie am Referenzpunkt aus der Ziegelsteindosis in einer Schichttiefe im Ziegelstein von 0,5 cm – 1,5 cm. Die Konversionsfaktoren, die sich bei Berücksichtigung einer Kontamination der Wand selbst ergeben, wobei in diesem Fall die Flächenaktivität auf der Wand mit 10% der Flächenaktivität auf dem Boden angenommen wird, sind in Klammern angegeben. Die angenommene Quellenenergie beträgt 662 keV.

	Konversionsfaktor bei Mittelung der Dosis in Luft bis zu Abstand 10 m von den Wand	Konversionsfaktor bei Mittelung der Dosis in Luft bis zu Abstand 25 m von den Wand	Konversionsfaktor bezüglich des Referenzpunktes
Räumlich homogene Deposition der Radionuklide bei Eindringen in den Boden bis zu			
0 g cm <sup>-2</sup>	1,60 (1,47)	1,74 (1,59)	1,96 (1,79)
1 g cm <sup>-2</sup>	1,64 (1,46)	1,76 (1,56)	1,93 (1,70)
6 g cm <sup>-2</sup>	1,68 (1,41)	1,78 (1,47)	1,88 (1,55)
30 g cm <sup>-2</sup>	1,65 (1,14)	1,74 (1,17)	1,84 (1,20)
Beispiele räumlich heterogener Deposition der Radionuklide:			
Eindringen der Radionuklide in den Boden bis zu 1 g cm <sup>-2</sup> ; im Bereich bis zu 2 m von der Wand doppelte Aktivität	1,36 (1,25)	1,39 (1,27)	1,46 (1,32)
Eindringen der Radionuklide in den Boden bis zu 1 g cm <sup>-2</sup> ; im Bereich bis zu 4,5 m von der Wand eine um den Faktor 5 reduzierte Aktivität	2,10 (1,80)	2,62 (2,16)	3,11 (2,55)
Ungestörter Boden im Bereich bis zu 7,5 m von der Wand bei einer Eindringtiefe bis zu 1 g cm <sup>-2</sup> und gestörter Boden bis zu 30 g cm <sup>-2</sup> im Bereich jenseits von 7,5 m von der Wand	1,40 (1,17)	1,06 (0,89)	relativ zu 30 g cm <sup>-2</sup> 0,75 (0,62)  relativ zu 1 g cm <sup>-2</sup> 3,08 (2,53)

- Im Fall des ungestörten Bodens (Eindringen von Radionukliden in den Boden bis zu einer Eindringtiefe von  $1 \text{ g cm}^{-2}$ ) im Bereich nahe der Probennahmestelle an der Wand und gestörten Bodens mit Radionukliden verteilt bis in eine Tiefe von Eindringen von  $30 \text{ g cm}^{-2}$  im weiter entfernten Bodenbereich sind die Konversionsfaktoren kleiner als bei homogener Verteilung. Im angegebenen Beispiel ist der Konversionsfaktor bezüglich des Referenzpunktes um einen Faktor 2 kleiner als derselbe Konversionsfaktor bei homogener Deposition, wenn man eine Verteilung von Radionukliden bis  $30 \text{ g cm}^{-2}$  im Boden am Ort des Referenzpunktes annähme; er wäre allerdings um einen Faktor 4 größer, wenn man am Ort des Referenzpunktes ungestörten Boden voraussetzt.
- Die Kontamination der Wand führt generell zu einer Abnahme der Konversionsfaktoren. Die relative Abnahme ist größer, wenn die vom Boden kommende Strahlung abgeschirmt ist, wie dies bei Eindringen der Radionuklide in den Boden der Fall ist.

#### **5.4 Einfluss der Quellenkonfiguration auf den Dosisverlauf mit der Höhe der Probennahme über dem Boden**

Die Ermittlung des Dosisverlaufs mit der Höhe der Probennahme über dem Boden am selben Gebäude führt zu Informationen über die Quellenkonfiguration. In Tab. 9 sind die Verhältnisse der Strahlendosen in Ziegelsteinen unterschiedlicher Höhe über dem Boden, jeweils relativ zur Dosis in 1 m Höhe, angegeben. Die Dosen wurden für verschiedene Quellenkonfigurationen mit Monte-Carlo-Methoden ermittelt.

Für Strahlung aus einer halbunendlichen radioaktiven Wolke wächst die Dosis im Ziegelstein mit der Höhe des Ziegels über dem Boden, während man für Strahlung aus am Boden deponierten Radionukliden den umgekehrten Effekt feststellt. Dieses Verhalten kann zur Klärung der Frage genutzt werden, ob die die Ziegelsteindosis verursachende Strahlung hauptsächlich aus einer Wolke stammt oder von am Boden deponierten Radionukliden. Der Effekt beinhaltet auch quantitative Informationen über die relativen Anteile beider Quellenkonfigurationen. Im Fall eines Eindringens der Radionuklide in den Boden ist das Verhalten geringfügig weniger ausgeprägt. Aus den letzten beiden Spalten von Tab. 9 kann

man ersehen, dass der Dosisverlauf im Ziegelstein mit der Höhe stark von dem Depositionsmuster der Radionuklide vor dem Gebäude abhängt.

Tab. 9: Verhältnis der Dosen im Ziegelstein am Probenort bei verschiedener Höhe über dem Boden zu der Dosis im Ziegelstein bei einer Höhe von 1 m für für unterschiedliche Quellenkonfigurationen

Höhe des Probenortes (m)	Quellenkonfiguration				
	Strahlung aus einer halb-unendlichen Wolke	Strahlung von auf einer Flächen von bis 200 m vor der Wand deponierten Radionukliden	Strahlung von auf einer Flächen von bis 200 m vor der Wand deponierten Radionukliden bei einer Eindringtiefe von 5 g cm <sup>-2</sup> in den Boden	Strahlung von auf einer Flächen von bis 35 m vor der Wand deponierten Radionukliden	Strahlung von auf einer Flächen zwischen 35 m und 100 m vor der Wand deponierten Radionukliden
1	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
4	1,11	0,73	0,90	0,64	1,04
10	1,19	0,56	0,83	0,40	1,10
18	1,23	0,44	0,68	0,26	1,15

## 5.5 Einfluss der Quellenkonfiguration auf das Tiefenprofil der Dosis im Ziegelstein

Tiefenprofile des Dosisverlaufs im Ziegel erhält man bei Ermittlung der anthropogenen Dosis im Ziegelstein als einer Funktion der Schichttiefe im Ziegel, gemessen von der exponierten Oberfläche weg. Sie hängen zum Einen von der Energie der auf den Ziegelstein einfallenden Gammastrahlung und zum Anderen von dem Winkel ab, unter dem die Strahlung auf die Oberfläche des Ziegelsteines trifft. Durch eine Analyse des Dosis-Tiefenprofils in einem Ziegelstein können somit Erkenntnisse über die mittlere Energie der einfallenden Strahlung sowie deren Quellenkonfiguration gewonnen werden.

Voraussetzung für eine derartige Analyse ist ein umfassendes Verständnis der Tiefenprofile für verschiedene Quellenenergien und –konfigurationen. Frühere Monte-Carlo-Simulationen [MECKBACH *et al.*, 1996] wurden in der vorliegenden Arbeit fortgeführt, um zusätzlich zu dem bereits vorhandenen Wissen neue Erkenntnisse über Dosisverläufe und Tiefenprofile für Strahlung aus halbusendlichen Wolken zu erlangen. Abb. 12 zeigt die für unterschiedliche Quellenenergien berechneten Tiefenprofile in einer Ziegelwand in 1 m Höhe nach Exposition gegenüber Radionuklide, die am Boden deponiert wurden. Die entsprechenden Berechnungen für die Exposition gegenüber der Strahlung aus einer halbusendlichen Wolke bzw. für den Fall der Kontamination der Ziegelwand selbst sind in Abb. 13 und in Abb. 14 dargestellt.

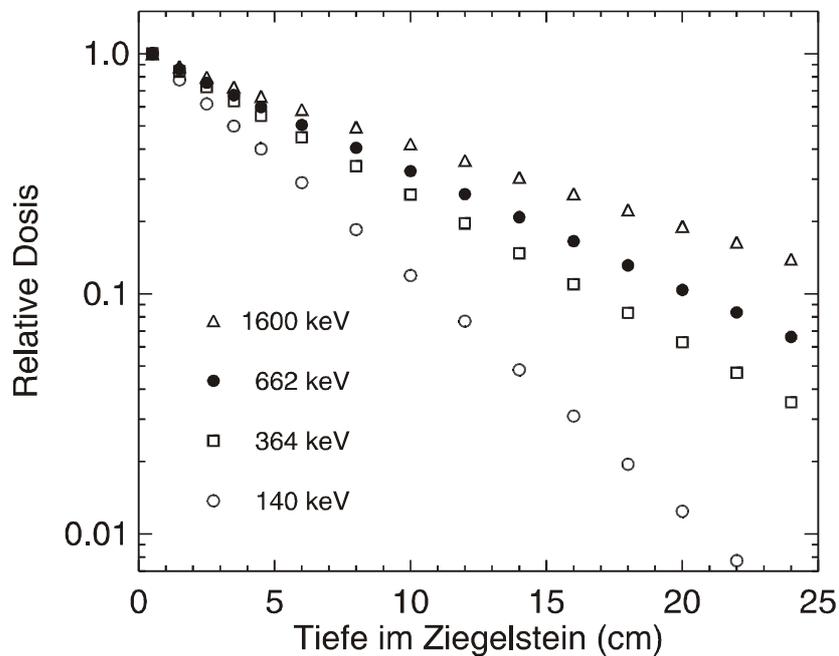


Abb. 12: Berechnete Tiefenprofile in einer Ziegelwand in 1 m Höhe nach Exposition gegenüber Radionukliden, die am Boden deponiert wurden. Die berücksichtigten Quellenenergien sind 140 keV, 364 keV, 662 keV und 1600 keV. Die Dosiswerte wurden bzgl. der des Dosiswertes in der Frontschicht normiert.

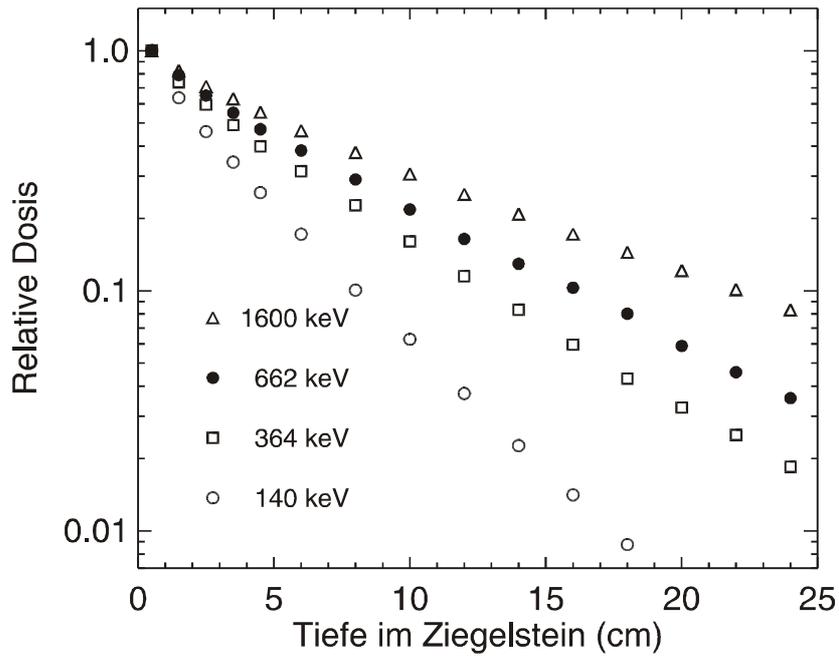


Abb. 13: Berechnete Tiefenprofile in einer Ziegelwand in 1 m Höhe nach Exposition gegenüber Strahlung von Radionukliden aus einer halbinendlichen Wolke. Die berücksichtigten Quellenenergien sind 140 keV, 364 keV, 662 keV und 1600 keV. Die Dosiswerte wurden bzgl. der des Dosiswertes in der Frontschicht normiert.

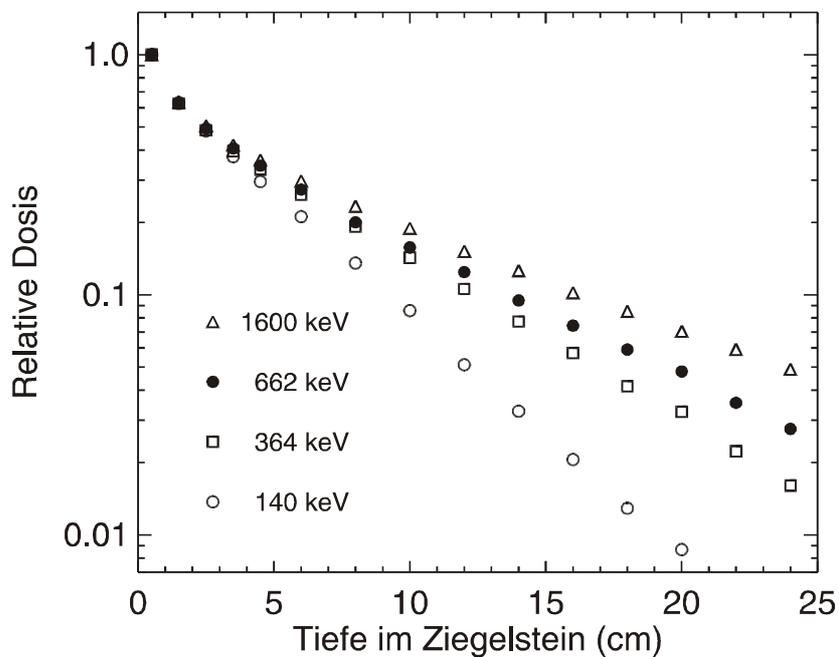


Abb. 14: Berechnete Tiefenprofile in einer Ziegelwand in 1 m Höhe nach Exposition durch Kontamination der Wand selbst. Die berücksichtigten Quellenenergien sind 140 keV, 364 keV, 662 keV und 1600 keV. Die Dosiswerte wurden bzgl. der des Dosiswertes in der Frontschicht normiert.

Ein Vergleich der für verschiedene Quellenkonfigurationen berechneten Tiefenprofile ist in Abb. 15 dargestellt. Dabei fällt die starke Abhängigkeit des Profilverlaufs von der jeweiligen Quellenkonfiguration ins Auge. Die Unterschiede rühren dabei hauptsächlich von den unterschiedlichen Vorzugswinkeln der auf die Ziegelwand treffenden Strahlung her.

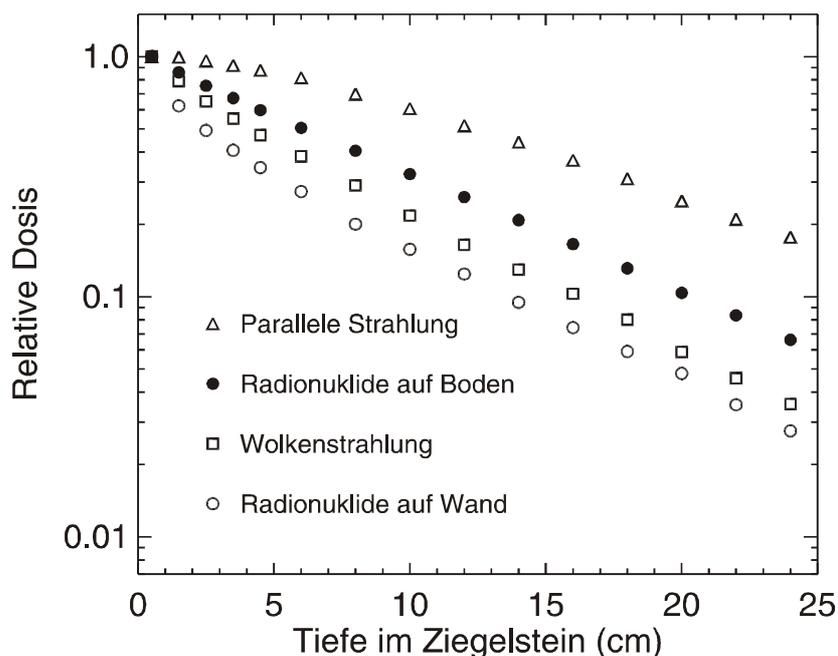


Abb. 15: Berechnete Tiefenprofile für eine Ziegelwand bei unterschiedlichen Bestrahlungsszenarien. Die berücksichtigte Quellenenergie ist 662 keV. Die Dosiswerte wurden bzgl. der des Dosiswertes in der Frontschicht normiert.

Um den Einfluss eines Eindringens der Radionuklide in den Boden zu erfassen, wurden zudem entsprechende Tiefenprofile für unterschiedliche Eindringtiefen in den Boden und, darüber hinaus, ein Tiefenprofil für ein typisches heterogenes Depositionsszenario berechnet. In diesem Beispiel wird von einer um den Faktor 4 erhöhten Flächenaktivität in einem 40 cm breitem Streifen zwischen dem Abstand 40 cm von der Wand und 80 cm von der Wand ausgegangen. Eine derartige Situation ist bei Annahme eines um 60 cm vorstehenden Daches über der Mauer und einem durch Regen bedingtem Auswaschen der auf dem Dach deponierten Radionuklide und ihrem anschließendem Abtropfen vom Dach gegeben. Die Ergebnisse sind in Tab. 10 zusammengefasst.

Tab. 10: Verhältnis der Dosen im Ziegelstein in verschiedenen Schichttiefen zu der Dosis in der ersten Schicht zwischen 0,5 cm und 1,5 cm für in einer Fläche bis 200 m vor der Ziegelmauerhomogen deponierte Radionuklide bei unterschiedlichen Eindringtiefen der Radionuklide in den Boden und für ein Beispiel heterogener Deposition (Beschreibung im Text). In Klammern ist die relative prozentuale Abweichung der Werte zu denen für die homogene Deposition am Boden ohne Eindringen in den Boden dargestellt

	Verhältnis der Dosen in einer Schichttiefe im Ziegelstein von			
	4 cm - 5 cm	9 cm - 11 cm	13 cm - 15 cm	19 cm - 21 cm
homogene Deposition der Radionuklide am Boden bei einer Eindringtiefe bis zu				
0 g cm <sup>-2</sup> (kein Eindringen)	0,64	0,35	0,22	0,11
1 g cm <sup>-2</sup>	0,62 (3,1 %)	0,32 (6,4 %)	0,20 (8,6 %)	0,10 (8,6 %)
5 g cm <sup>-2</sup>	0,58 (9,0 %)	0,29 (16, %)	0,18 (20, %)	0,086 (23, %)
30 g cm <sup>-2</sup>	0,55 (15, %)	0,26 (26, %)	0,15 (33, %)	0,070 (38, %)
heterogene Deposition (Beispiel aus dem Text)	0,60 (6,2 %)	0,30 (14, %)	0,18 (18, %)	0,091 (18, %)

## 6 Literatur

BAILIFF, I.K., & BARNETT, S.M., (1994): *Characteristics of infrared-stimulated luminescence from feldspar at low temperatures*, Radiat. Meas. 23, S. 541-545.

DULLER, G.A.T., & WINTLE, A.G., (1991): *On infrared stimulated luminescence at elevated temperatures*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 18, S. 379-384.

GÖKSU, H.Y., & BULUR, E., (1999): *Beta dosimetry using thin layer  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C TL detectors*, Radiat. Prot. Dosim. 84, S. 451-457.

MECKBACH, R., BAILIFF, I.K., GÖKSU, H.Y., JACOB, P., & STONEHAM., D., (1996):

*Calculation and Measurement of Dose-Depth distribution in Bricks*, Radiat. Prot. Dosim. 66, 1-4, S. 183-186.

NIEDERMAYER, M., GÖKSU, H.Y., DALHEIMER, A., & BAYER, A., (2000): *Infrared (IR)*

*Stimulated Luminescence from Modern Bricks in Retrospective Dosimetry Applications*, Radiat. Meas. 32, S. 825-832.

## 7 Danksagung

Die Autoren möchten sich herzlich für die Hilfe und Unterstützung bedanken, die sie bei der Bearbeitung des vorliegenden Projektes von vielerlei Seite – Einzelpersonen, Zahnärzten, zahnärztlichen Laboratorien sowie Herstellern von Zahnfüllungsmaterialien, Telefonkarten und Cash-Chips – erfahren haben. Besonders ist Herr Dr. Krützmann für die zur Verfügung Stellung einer Reihe von sowohl Roh- als auch zahnärztlich aufbereiteten Zahnfüllungsmaterialien, Frau Dr. Heubisch und Herrn Schal für detaillierte Informationen über verschiedene Zahnfüllungsmaterialien und ihre Verarbeitung sowie die zur Verfügung Stellung einer Auswahl und Herrn Dr. Peez, Frau Dr. Rackelmann und Herrn Dr. Stefan von der Fa. ESPE 3M für detaillierte Informationen über die Herstellung und Verarbeitung von Glasionomerzementen sowie die zur Verfügung Stellung von Ketac-Molar-Proben, die speziell für dieses Projekt unter Berücksichtigung verschiedener Produktionsprozesse gefertigt wurden, zu danken.

Darüber hinaus sei Frau Dr. Oppits und Herrn Dr. Elshof von der Fa. Infineon für ihr Interesse und ihre Unterstützung für das vorliegende Projekt gedankt.

Die gesamten untersuchten Telefonkarten (über 200!) entstammen der Sammlung von Herrn Dr. Pröhl, für dessen großzügige Spende es den Autoren ein Anliegen ist, sich herzlich zu bedanken.

Nicht zuletzt ist Herrn Dr. Kirchinger für wertvolle Diskussionen und Informationen über die in dem Projekt untersuchten Tabletten und ihre Anwendung zu danken.

## **ANHANG:**

**Messverfahren zur Dosisrekonstruktion unter Verwendung  
von Lumineszenz-Methoden anhand von Ziegelsteinen**



# INHALT

<b>A 1</b>	<b>Einleitung</b>	A- 1
<b>A 2</b>	<b>Feldarbeit</b>	A- 2
<b>A 2.1</b>	<b>Methoden der Felderfassung</b>	A- 2
<b>A 2.2</b>	<b>Probensammlung</b>	A- 3
<b>A 2.3</b>	<b>Bodenbeprobung</b>	A- 3
<b>A 2.4</b>	<b>Messung der Dosisleistung</b>	A- 4
<b>A 2.5</b>	<b>In-situ-Gammaspektrometrie</b>	A- 5
<b>A 2.6</b>	<b>Archivierung und Dokumentation</b>	A- 5
<b>A 3</b>	<b>Probenaufbereitung</b>	A- 6
<b>A 3.1</b>	<b>Quarzextraktion aus den Ziegelsteinen</b>	A- 6
<b>A 3.2</b>	<b>Extraktion von polymineralischem Feinkorn aus Ziegelsteinen</b>	A- 7
<b>A 4</b>	<b>Dosisermittlung unter Verwendung von Lumineszenzmethoden</b>	A- 8
<b>A 4.1</b>	<b>Quellenkalibrierung</b>	A- 8
<b>A 4.2</b>	<b>Ermittlung der kumulativen Dosis in Quarz oder Feldspat</b>	A- 9
<b>A 4.3</b>	<b>Voruntersuchungen für die TL-Messung</b>	A- 9
<b>A 4.4</b>	<b>Bestimmung der kumulativen Dosis in Quarz</b>	A-10
<b>A 4.5</b>	<b>Bestimmung der anthropogenen kumulativen Dosis</b>	A-10
<b>A 5</b>	<b>Bestimmung der natürlichen Dosisleistung</b>	A-11
<b>A 5.1</b>	<b>„Thick source alpha counting“ für die Bestimmung der U- und Th-Dosisbeiträge</b>	A-11
<b>A 5.2</b>	<b>Bestimmung der Beta-Dosisleistung mithilfe dünner <math>\alpha</math>-<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>: C – Dosimeter</b>	A-12
<b>A 6</b>	<b>Empfehlungen</b>	A-13
<b>A 7</b>	<b>Messesequenzen</b>	A-14
<b>A 8</b>	<b>Zitierte und weiterführende Literatur</b>	A-18

## A 1 Einleitung

Das grundlegende Prinzip der Dosisrekonstruktion externer Gammadosen mithilfe von Lumineszenzverfahren beruht auf der Aufzeichnung strahleninduzierter Effekte in Festkörpern. Im vorliegenden Fall handelt es sich bei den Festkörpern um natürliche Minerale wie Quarz, Feldspat oder weitere Tonminerale, die aus Baumaterial extrahiert werden, das im Lauf seiner Produktion hinreichend großer Hitze ausgesetzt wurde.

Das kumulative Lumineszenzsignal, das anhand dieser Baumaterialien festgestellt wird, setzt sich aus dem Hintergrundsignal und dem eigentlichen Messsignal zusammen. Das Hintergrundsignal beruht auf der natürlichen Radioaktivität am Ort der Probenahme, das Messsignal aber ist anthropogen. Daher muss der Hintergrundbeitrag von der gesamt ermittelten Dosis subtrahiert werden. Dazu ist der Gehalt an Radionukliden in den Ziegeln und dem umgebenden Untergrund zu bestimmen, falls das Alter des Gebäudes bekannt ist. Ist dies nicht der Fall, kann ein Ziegelstein aus dem Gebäudeinneren dazu verwendet werden die altersbedingte Hintergrunddosis festzustellen. In den folgenden Abschnitten werden die auf Lumineszenzeffekte basierenden Laborverfahren zum Testen einer Probe auf Eignung und zur Bestimmung der kumulativen externer Gammadosen beschrieben.

Das vorliegende Dokument umschließt sämtliche Phasen der Dosisrekonstruktion, beginnend mit der Feldarbeit bei der Probensammlung bis hin zur Bestimmung der kumulativen Dosis unter Verwendung verschiedener Techniken an Ziegeln. Die hier vorgestellten optimierten Messverfahren beruhen auf Erfahrungen, die sowohl bei Feldarbeiten im Verlauf früherer EU- und INCO-COPERNICUS-Vorhaben und jahrelanger Labortätigkeit als auch im Verlauf des vorliegenden Vorhabens gesammelt wurden. Die Absicht des Dokumentes ist, dem bereits mit Strahlendosimetrie, dosimetrischen Konzepten und der Laborpraxis der Lumineszenzmessung vertrauten Fachmann eine Richtschnur zur Bestimmung kumulativer externer Gammadosen an die Hand zu geben.

Es ist aber wichtig festzustellen, dass die Methodik der Dosisrekonstruktion unter Verwendung von Lumineszenzverfahren nie eine Routinemessung sein kann. Sie erfordert ein fundamentales Verständnis des Lumineszenz-Effektes sowie des Verhaltens natürlicher Minerale bei Exposition gegenüber ionisierender Strahlung unterschiedlicher Energie. Es

werden hiermit aber dennoch Standardtests zur Verfügung gestellt, um Kenntnis über die Eignung des jeweiligen Probenmaterials zu erhalten, und Auswerteverfahren basierend auf sog. „additive“ und „regenerative“ Vergleichsmessungen. Darüber hinaus wird ein Verfahren für vergleichsweise gering empfindliche Quarzproben (das sog. „Predose-Verfahren“) für Fälle, in denen alle anderen Verfahren versagen, eingeschlossen.

Zusätzlich werden Richtlinien zur Probensammlung und Probenaufbereitung speziell für die Ermittlung von Dositiefenprofilen angegeben, sodass die Möglichkeit der Kombination der Messungen mit Monte-Carlo-Simulationen gegeben ist.

## **A 2 Feldarbeit**

### **A 2.1 Methoden der Felderfassung**

Die Dosisermittlung mittels Lumineszenz-Verfahren besteht aus einer Reihe verschiedener Einzelschritte, die mit der Probensammlung beginnen und über die Probenaufbereitung und Lumineszenzmessungen zu der Umrechnung der in den Ziegelsteinen festgestellten Dosen in die Dosis in Luft an einem relevanten Referenzpunkt führen, sodass die für die Bevölkerung oder für Teile der Bevölkerung relevanten Dosen ermittelt werden können.

Um dieses Ziel zu erreichen, wurde in dem vorliegenden Projekt ein sehr genaues Verfahren ausgearbeitet, um den am besten geeigneten Ort für die Probenahme, die am besten geeigneten Verfahren für die Bestimmung der Dosisleistung und Aktivität in der Umgebung der Probenahme sowie in dem beprobten Gebäude auszuwählen. Die sorgfältige Messung und ihre korrekte Aufnahme bilden eine wichtige Grundlage für die Berechnung von Konversionsfaktoren für die Umrechnung der in Ziegelsteinen festgestellten Dosis in die Dosis in Luft an einem relevanten Referenzpunkt in Luft. Die zentralen Richtlinien für die Felderfassung sind nachfolgend zusammengefasst.

## A 2.2 Probensammlung

- Aufnahme der Gleichförmigkeit der zum Zeitpunkt der Probenahme feststellbaren Dosisleistung um den Ort der Probenahme herum. Dabei besonders zu beachten:
  - Aufnahme von Abweichungen dieser Gleichförmigkeit aufgrund von Effekten, hervorgerufen durch die jeweilige Bedachungssituation, durch Einfluss von tierischen Tätigkeiten, usw.
  - Erstellung einer detaillierten Karte des beprobten Areals bis hin zu einem Abstand von 40 m vom Ort der Probenahme und einer detaillierten Skizze der unmittelbaren Umgebung der Beprobungsstelle (bis zu 10 m Abstand).
- Aufnahme der Gebäudestrukturen
- Aufnahme der umgebenden Landschaftsmerkmale, wie Bäume, Büsche, gestörter oder ungestörter Untergrund, z.B. durch Pflastersteine versiegelte Bodenbereiche, Straßen Fußwege.
- Aufnahme von Bereichen, an denen eine veränderte Radionuklidaktivität vorliegen könnte (z.B. unter Bedachungen)
- Aufnahme der Art der anthropogenen Bodenbearbeitung im Bereich der Probenahme
- Erstellung einer detaillierten Skizze des beprobten Gebäudes selbst, einschließlich der Dicke der Wände und der Lage und Größe der Türen und Fenster.

## A 2.3 Bodenbeprobung

Nachdem die Wahl für die Beprobungsstellen bzgl. der Ziegelsteine selbst getroffen ist, sind Bodenproben an verschiedenen Stellen im Abstand von 1 m bis hin zu 12 m vom Ort der Probenahmestelle der Ziegelsteine zu nehmen.

- Entnahme von mind. sechs Bohrkernen zur Bestimmung der absoluten Aktivität  
(Die verschiedenen Bohrkern sollten dabei nicht miteinander vermischt werden; dies ist notwendig, um die Mittelwertbildung und Berechnung der Standardabweichung zu ermöglichen.)
- Entnahme von weiteren sechs Bohrkernen zur Bestimmung des Tiefenprofils der Radionuklid-Konzentrationen im Boden  
(Eine Vermischung der jeweiligen Anteile der verschiedenen Bohrkern kann dabei erforderlich sein, um eine zu große Anzahl an Einzelproben zu vermeiden; dennoch ist eine separate Messung in einzelnen Fällen durchaus von Interesse, da über sie Information über die Variabilität der verschiedenen Tielprofilen am Beprobungsort gewonnen werden kann.)
- für die Bestimmung der absoluten Aktivität: zusätzliche Entnahme von Bodenproben an Punkten, an denen mit erhöhter Radionuklid-Aktivität zu rechnen ist (z.B. unter der Abtropfkante von Dächern)
- schließlich: Entnahme von Bodenproben aus einer Tiefe von 25 – 30 cm Tiefe zur Bestimmung der natürlichen Radionuklid-Konzentration (hauptsächlich hervorgerufen durch den U-, Th- und K-Gehalt des ursprünglichen Bodens)

## **A 2.4 Messung der Dosisleistung**

Die Messung der Dosisleistung sollte – je nach Art des verwendeten Dosisleistungsmessgerätes – über eine längere Zeitdauer durchgeführt werden, um Effekte kurzfristiger Schwankungen zu vermeiden. Der Typ des Messgerätes und sein Energie-Ansprechverhalten sind festzuhalten.

- Aufnahme der Dosisleistung an dem Punkt, an dem der Ziegel genommen wurde, vor und nach der Entnahme des Ziegels

- Aufnahme der Dosisleistung nach Entnahme des Ziegels, 10 cm in der entstehenden Wandhöhhlung
- Aufnahme der Dosisleistung über Boden in einer Höhe von 20 cm und 1 m bis zu einem Abstand von 20 m und gesondert über versiegeltem und gestörtem Untergrund
- zudem zu empfehlen: Aufnahme einer raschen Erhebung der Dosisleistung in der näheren und weiteren Umgebung des Gebäudes
- falls möglich: Aufnahme der Dosisleistung mittels passiver Dosimeter am Ort der Probenahme über die Dauer von 1 Jahr

## **A 2.5 In-situ-Gammaspektrometrie**

Derartige Messungen können wichtig sein, um Informationen über die aktuelle Kontamination zu erlangen; die Messungen sollten an den in Absatz A 2.4 beschriebenen Punkten vorgenommen werden.

## **A 2.6 Archivierung und Dokumentation**

- Dokumentation der geographischen Koordinaten des Ortes der Probenahme, wenn möglich unter Verwendung von GPS
- Dokumentation des Alters des Gebäudes
- Dokumentation der offiziellen Adresse des Gebäudes
- Dokumentation der Namen der Bewohner des Gebäudes
- Bildliche Dokumentation der Probenahmestelle und ihrer Umgebung (fotographisch oder per Video)

- Dokumentation der Ziegel- und Bodenproben sowie weiterer ggf. genommener Proben anderen Materials durch Vergabe von Nummern und gesonderte Beschreibung der Proben

### **A 3 Probenaufbereitung**

- Entfernung der gegenüber Licht exponierten Oberfläche (obere 2 – 3 mm) des Ziegelsteins (Dieser Schritt ist essentiell, um den Einfluss von Licht oder andere Umgebungseinflüsse auf das Messergebnis zu unterdrücken.)
- Aufteilen des verbleibenden Ziegelsteines in 1 cm dicke Scheiben parallel zur Vorderfront.

#### **A 3.1 Quarzextraktion aus den Ziegelsteinen**

- Unter Vermeidung von Mahlen: Brechen der Scheiben einzeln und separat voneinander mithilfe einer Handpresse aus rostfreiem Stahl
- Aussieben der Korngrößenfraktion  $< 45 \mu\text{m}$ ,  $90 \mu\text{m} - 140 \mu\text{m}$ ,  $140 \mu\text{m} - 200 \mu\text{m}$  oder größer (abhängig von der Laborkalibration und von der weiter verwendeten Methode; Feinkornmethode: vgl. Kap. A 3.2); Bewahren des Restes der Probe für weitere Messungen!
- Baden in 1%iger HCl, bis keine Blasenbildung mehr festgestellt werden kann
- Nach Waschen der Proben unter fließendem Wasser: Waschen mit destilliertem Wasser
- Trocknen über Nacht bei  $45 \text{ }^\circ\text{C}$

- Bereiten von Natrium-Polywolframat-Lösungen mit den Dichten 2,70 und 2,62
- Abtrennung der Schwerminerale (z.B. Eisen) durch Aufschlämmen der Probe in der Natrium-Polywolframat-Lösung der Dichte 2,70 und Zentrifugieren, dann Abtrennung der Quarz-Fraktion durch Aufschlämmen der Probe in der Natrium-Polywolframat-Lösung der Dichte 2,62 und Zentrifugieren
- Waschen in destilliertem Wasser, Spülen mit Ethanol, Trocknen bei 45 °C über Nacht
- Falls ein hoher Hintergrund zu erwarten ist: Waschen mit 40%iger HF, 40 min (Das Waschen in HF nach Abtrennung der Schwerminerale zeigt sich vorteilhaft, da dadurch die Verwendung großer HF-Mengen vermieden werden kann.)
- Testen des Erfolges der Quarz-Abtrennung mittels IR-OSL

### **A 3.2 Extraktion von polymineralischem Feinkorn aus Ziegelsteinen**

Gegenüber der Quarzextraktion ist dies nicht diese Methode eine Methode zweiter Wahl, da für die Ermittlung des Dosisanteils basierend auf der Alpha-Strahlung natürlich im Ziegel auftretender Radionuklide zusätzliche Messungen erforderlich sind. Es ist allerdings möglich, dass die Mineralzusammensetzung von einzelnen Ziegelsteine einen zu geringen Anteil an Quarz in geeigneter Korngröße aufweist; in diesem Fall ist die Messung anhand polymineralischen Feinkorns die beste Alternative.

- Unter Vermeidung von Mahlen: Brechen der Scheiben einzeln und separat voneinander mithilfe einer Handpresse aus rostfreiem Stahl
- Aussieben der Korngrößenfraktion < 45 µm (notwendig: ca. 1 g)
- Baden in 1%iger HCl, bis keine Blasenbildung mehr festgestellt werden kann
- Nach Waschen der Proben unter fließendem Wasser: Waschen mit destilliertem Wasser
- Trocknen über Nacht bei 45 °C
- Wiederholung des Siebevorganges

- AufschlÄmmen der Proben in Aceton in einem Reagenzglas (LÄnge 12 cm); Aufschütteln im Ultraschallbad 2 min
- 2 min Sedimentation
- Umschütten der verbleibenden Suspension in ein weiteres Reagenzglas
- 20 min Sedimentation
- Verwerfen der verbleibenden Suspension
- Aufnahme des gewonnenen Sediments mit Aceton; Aufschütteln im Ultraschallbad
- Rasche Aufteilung in gleichen Portionen auf Probenträger aus rostfreiem Stahl (mind. 36 Teilproben)
- Testen des Feldspat-Anteils mittels IR-OSL
- Verwendung der einzelnen Teilproben: Teilproben 1 – 6: Vorheiztest; Teilproben 7 – 12: Plateautest; Teilproben 13 – 36: Dosisermittlung unter Verwendung der ADMAR-Technik.

## **A 4 Dosisermittlung unter Verwendung von Lumineszenzmethoden**

### **A 4.1 Quellenkalibrierung**

Wenn ein automatisches Lumineszenz-Messgerät mit eingebauter Beta-Quelle verwendet wird, ist die korrekte Kalibrierung der Beta-Quelle gegenüber einer Photonenquelle (möglichst einem Primär- oder Sekundärstandard) von essentieller Bedeutung für eine möglichst exakte Bestimmung der Dosis. Die Kalibrierung muss unter Berücksichtigung des konkreten Proben- und Trägermaterials sowie der verwendeten Korngröße durchgeführt werden (vgl. [GÖKSU *et al.*, 1995] und [NIEDERMAYER *et al.*, 2000]).

## **A 4.2 Ermittlung der kumulativen Dosis in Quarz oder Feldspat**

Die vorzuziehende Art der Messequenz hängt von der Quarzausbeute und des Dosis-Wirkungs-Verhaltens der Einzelprobe ab. Die Entscheidung darüber wird durch Tests getroffen, wie sie nachfolgend beschrieben sind. Messungen, die auf additive oder regenerative Vergleichsmessungen beruhen, können nur angewandt werden, wenn die Dosiswirkung ausreichend ist; andernfalls finden TL-Predose-Verfahren Anwendung.

Es wird empfohlen, dass mehr als eine Technik angewandt wird und die Ergebnisse miteinander verglichen werden, bevor sie für epidemiologische Studien eingesetzt oder zur Veröffentlichung zur Verfügung gestellt werden.

## **A 4.3 Voruntersuchungen für die TL-Messung**

Die Untersuchungen dienen dazu, die für das jeweilige Probenmaterial am besten geeigneten Messparameter und sowie Messtechniken zu bestimmen.

- a) Dosiswirkung im zu untersuchenden Dosisbereich: Falls die natürliche TL-Intensität kleiner ist als der dreifache Wert der Schwarzkörper-Hintergrundstrahlung, ist die 110°C-TL-Predose-Technik anzuwenden.
- b) Bestimmung der Vorheiztemperatur: Die erforderliche Vorheiztemperatur ergibt sich durch die Messung an 6 Teilproben unter Verwendung unterschiedlicher Vorheiztemperaturen und dem Vergleich der sich ergebenden Glowkurven mit der Glowkurve der natürlichen TL (Messequenz vgl. Tab. A 1)
- c) Plateautest: Das für die Auswertung geeignetste Temperaturintervall, über den in der ADMAR-Technik zu integrieren ist, ergibt sich aus der Messequenz Tab. A 2. Diese gibt zudem wichtige Information über die Linearität des Dosis-Wirkungs-Verhaltens und der Empfindlichkeit der Messprobe.

- d) Bestimmung des Dosisbereichs, der für Vergleichsbestrahlungen anzuwenden ist, aus den Messungen in c).
- e) Falls die Messungen auf polymineralischem oder Feldspat-Feinkorn beruhen, sind einige eigens dafür bestrahlte Proben aufzubewahren, damit sie auf anomales Fading getestet werden können.
- f) Falls in den Messungen in c) eine Veränderung der Empfindlichkeit der Proben gegenüber der Dosis mit jedem weiteren Messzyklus festgestellt wird, kann die „Regenerativ-Dosis-MAR“-Technik nicht angewandt werden. In diesem Fall kann für die Ermittlung der absorbierten Dosis nur die „Additiv-Dosis-ADMAR“ angewandt werden (Messequenz: Tab. A 2)
- g) Falls die oben geschilderten Tests alle positiv ausfallen, kann die „Regenerativ-Dosis-MAR“-Technik Anwendung finden werden (Messequenz: Tab. A 3).

#### **A 4.4 Bestimmung der kumulativen Dosis in Quarz**

Wenn Quarz, Feldspat oder polymineralisches Feinkorn sich im Laufe der Tests als geeignet erwiesen haben, ist die vorzuziehende Messmethode MAR unter Verwendung der in den Tests ermittelten Parametern. Für die Berechnung der Dosis: vgl. Tab. A 3, „Bemerkung“.

#### **A 4.5 Bestimmung der anthropogenen kumulativen Dosis**

Zur Bestimmung der anthropogenen kumulativen Dosis muss von der gesamten im Ziegelstein festgestellten Dosis der natürliche Hintergrundbeitrag subtrahiert werden. Diesen zu bestimmen, gibt es verschiedene Wege:

- a) Bestimmung anhand eines der anthropogenen Quelle nicht exponierten Ziegelsteines des gleichen Typs (beispielsweise aus dem Gebäudeinneren)

- b) Falls das Alter des Gebäudes bekannt ist und die Dosisleistung aufgrund natürlicher Radionuklide vor einer etwaigen Kontamination bestimmt werden kann: Bestimmung des natürlichen U-, Th- und K-Gehaltes des Ziegelsteines selbst sowie der unmittelbaren Umgebung. Dies kann mithilfe spektrometrischer Methoden oder Alpha- und Beta-Zählung erreicht werden.

## **A 5 Bestimmung der natürlichen Dosisleistung**

### **A 5.1 „Thick source alpha counting“ für die Bestimmung der U- und Th-Dosisbeiträge**

Zur Bestimmung des U- und Th-Gehaltes im Ziegelstein wird bei der „Thick-source-alpha-counting“-Methode ein ZnS-Schirm (Durchmesser 4,5 cm) verwendet. Dieser ist gegenüber dem „US Geological Standard (BCR-1)“ zu kalibrieren. Die interne effektive Alpha-Teilchen-Dosisleistung wird dann mithilfe des sog. a-Faktors berechnet. Dieser berücksichtigt die Effizienz, mit der die Bestrahlung eines Phosphors mit Alpha-Teilchen unabhängig von deren Energie zu TL führt. Zur Bestrahlung wird die Verwendung von 6 <sup>241</sup>Am-Flächenquellen, jeweils mit einer nominalen Aktivität von 6,66GBq dotiert und einzeln im Vakuum kalibriert, empfohlen.

Die Beta- und Gamma-Dosisleistung sowie, falls Feinkorn verwendet wird, die Alpha-Dosisleistung wird dann entsprechend der überarbeiteten Version der Bell-Konversionstabellen ([NAMBI & AITKEN, 1986]; [BELL, 1979]) errechnet.

## A 5.2 Bestimmung der Beta-Dosisleistung mithilfe dünner $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ : C – Dosimeter

Die absolute Beta-Dosisleistung wird mithilfe von Dünnschicht- $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ : C – Dosimetern ([AKSELROD *et al.*, 1990]; [BAILIFF & AITKEN, 1980] und [HASKELL, 1993]) gemessen. Für die detaillierte Beschreibung des Verfahrens wird auf [BAILIFF & AITKEN, 1980], [HASKELL, 1993] und [GÖKSU & BULUR, 1998] verwiesen.

Als technische Ausstattung für die Bestimmung der Beta-Dosisleistung mithilfe dünner  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ : C – Dosimeter wird an der GSF das TL-Messgerätes Risø TL/OSL-DA 10 der Fa. Risø National Laboratories (Risø National Laboratories, Roskilde, Dänemark), ausgestattet mit einem Sekundärelektronenvervielfacher mit einer Bialkali-Photokathode der Fa. Thorn-EMI (Thorn-EMI 9235 QB) und einem Satz optischer Filter (Corning C 7-59, Chance-Pilkington und (HA3) für die Hitzeabsorption) verwendet. Der Einsatz jüngerer Gerätetypen ist gleichermaßen möglich, jedoch sollte das in diesem Zusammenhang verwendete Gerät keine eingebaute Beta-Quelle besitzen, damit die Dosimeter nicht der durch die Beta-Quelle entstehende Bremsstrahlung ausgesetzt sind. Die Dosimeter sind mit einer Heizrate von 2 °C/s bis zu 400 °C auszuheizen; das Maximum der Glowkurve liegt bei 200 °C.

### *Empfehlungen für die Messung:*

- Das Vorsignal der Dosimeter sollte durch 5 mal wiederholtes Ausheizen bis 400 °C bei einer Heizrate von 2 °C/s gelöscht werden, bevor sie für Routinemessungen zum Einsatz kommen.
- Die TL-Signalintensität ist unter Verwendung eines  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Sekundärstandards zu kalibrieren.
- Als Proben sind 2 g homogenisierten Feinkorns zu verwenden, das vor der Lagerung bis 400 °C geheizt wurde.
- Die Proben sind mit einer Mylar-Folie (Dichte 1,0 mg/cm<sup>2</sup>) zu überdecken, bevor sie mit den Dosimetern belegt werden.
- Die ggf. eingebaute  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Beta-Quelle ist aus oben genannten Gründen auszubauen.

- Der Untergrund sollte mithilfe reinen Quarzes über die gesamte Lagerdauer gemessen werden; der Quarz ist in gleicher Weise wie die Proben aufzubereiten.
- Der Abstand der Proben voneinander innerhalb der Lagerabschirmung darf 5 cm nicht unterschreiten; dies ist notwendig, um den Einfluss des Übersprechens von einer Probe zur nächsten zu minimieren.

## **A 6 Empfehlungen**

Bei der Dosisrekonstruktion unter Verwendung von Lumineszenz-Methoden handelt es sich um ein komplexes Verfahren. Jeder Schritt von der Probenahme bis hin zur Präsentation der Ergebnisse erfordert sorgfältige Planung und Analyse. Daher ist es wichtig, dass die Messungen von einem Fachmann durchgeführt werden, der bereits hinreichend Erfahrung in TL-Dosimetrie besitzt.

## A 7 Messsequenzen

Tab. A 1: Messsequenz zur Ermittlung der geeignetsten Vorheiztemperatur

Messlauf und Proben Nr.	Behandlung	Bemerkung
<b>Messlauf 1</b>  Proben 1 - 6	Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme der natürlichen TL Glowkurven
<b>Messlauf 2</b>  Proben 1 - 6	Bestrahlung: Regenerative Beta-Dosis 1 N	
<b>Messlauf 3</b>  Probe 1 Probe 2 Probe 3 Probe 4 Probe 5 Probe 6  Proben 1 - 6	Kein Vorheizen Vorheizen 100° Vorheizen 120° Vorheizen 140° Vorheizen 150° Vorheizen 170° (Heizrate: 2 °C/s)  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme der vorgeheizten, regenerierten Glowkurven.  Vergleich von Messlauf 1 und 3.  Ältere Proben könnten Vorheiztemperaturen jenseits 170 °C benötigen, in diesem Fall ist die Messung mit höheren Vorheiztemperaturen zu wiederholen.

Tab. A 2: Messsequenz für die Dosisrekonstruktion basierend auf sog. „additive“ Vergleichsmessungen (ADMAR)

Messlauf und Proben Nr.	Behandlung	Bemerkung
<b>Messlauf 1</b>  Proben 1 - 6	Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Ältere Proben könnten Heizen über 300 °C benötigen
<b>Messlauf 2</b>  Proben 7 – 12  Proben 13 – 18  Proben 19 – 24	Natürliche Dosis + Beta- Bestrahlung (ca. 1/3 der natürlichen Dosis)  Natürliche Dosis + Beta- Bestrahlung (ca. 2/3 der natürlichen Dosis)  Natürliche Dosis + Beta- Bestrahlung (ca. die natürlichen Dosis)  Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Zusammen mit Messlauf 1:  Aufnahme der 1. Wachstumskurve
<b>Messlauf 3</b>  Proben 1 – 2  Proben 3 – 4  Proben 5 – 6	Regenerative Beta- Bestrahlung (ca. 1/6 der natürlichen Dosis)  Regenerative Beta- Bestrahlung (ca. 2/6 der natürlichen Dosis)  Regenerative Beta- Bestrahlung (ca. 3/6 der natürlichen Dosis)  Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme der 2. Wachstumskurve  Aus Vergleich der 1. und 2. Wachstumskurve ⇒ Interzept-Korrektur  Falls das Ergebnis für die zu messende Dosis aus Messlauf 2 und 3 identisch ist ( $D_{\text{regenerativ}} = D_{\text{additiv}}$ ): ⇒ Auswertung mittels regenerative Vergleichsmessungen möglich; vgl. Tab. A 3  Auswertung für jede Teilprobe einzeln!

Tab. A 3: Messsequenz für die Dosisrekonstruktion basierend auf sog. „regenerative“ Vergleichsmessungen (MAR)

Messlauf und Proben Nr.	Behandlung	Bemerkung
<b>Messlauf 1</b>  Proben 1 - 12	Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Ältere Proben könnten Heizen über 300 °C benötigen
<b>Messlauf 2</b>  Proben 1 - 12	Regenerative Beta-Bestrahlung (ca. 1/3 der natürlichen Dosis: $D_{B1}$ )  Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Für jede Einzelprobe:  $D_1 = D_{B1} \cdot (\text{Signal aus Messlauf 1 „TL1“} / \text{Signal aus Messlauf 2 „TL2“})$  $D_{1,av}$ : Mittelwert aus den D1-Werten sämtlicher Proben
<b>Messlauf 3</b>  Proben 1 - 12	Regenerative Beta-Bestrahlung (ca. 2/3 der natürlichen Dosis: $D_{B2}$ )  Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Für jede Einzelprobe:  $D_2 = D_{B2} \cdot (\text{Signal aus Messlauf 1 „TL1“} / \text{Signal aus Messlauf 3 „TL3“})$  $D_{2,av}$ : Mittelwert aus den D2-Werten sämtlicher Proben
<b>Messlauf 4</b>  Proben 1 - 12	Regenerative Beta-Bestrahlung (ca. die natürliche Dosis: $D_{B3}$ )  Vorheizen  Ausheizen bis 300°C (Heizrate: 5 °C/s)	Für jede Einzelprobe:  $D_3 = D_{B3} \cdot (\text{Signal aus Messlauf 1 „TL1“} / \text{Signal aus Messlauf 4 „TL4“})$  $D_{3,av}$ : Mittelwert aus den D3-Werten sämtlicher Proben

Das Endergebnis ergibt sich durch Mittelung infolge der Messläufe 2 – 4 errechneten Dosen  $D_{1,av}$ ,  $D_{2,av}$  und  $D_{3,av}$ .

Tab. A 4: Messsequenz für die Dosisrekonstruktion anhand von Quarz mit sehr geringem Dosis-Wirkungs-Verhältnis (PRE-DOSE unter Verwendung des 110°C-Maximums)

Messlauf und Proben Nr.	Behandlung	Bemerkung
<b>Messlauf 1</b> Proben 4 – 8  Proben 9 – 16  Proben 17 – 21  Proben 22 – 24	Natürliche Dosis + Beta-Bestrahlung (ca. 1/2 der natürlichen Dosis)  Natürliche Dosis + Beta-Bestrahlung (ca. die natürliche Dosis)  Natürliche Dosis + Beta-Bestrahlung (ca. die doppelte natürliche Dosis)  Natürliche Dosis + Beta-Bestrahlung (ca. die dreifache natürliche Dosis)	
<b>Messlauf 2</b> Proben 1 – 24	Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	
<b>Messlauf 3</b> Proben 1 – 24	Testdosis  Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme $S_0$
<b>Messlauf 4</b> Proben 1 – 24	Aktivierung:  Ausheizen bis 500°C oder höher	
<b>Messlauf 5</b> Proben 1 – 24	Testdosis  Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme $S_N$
<b>Messlauf 6</b> Proben 1 – 24	Additivdosis  Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	
<b>Messlauf 7</b> Proben 1 – 24	Testdosis  Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme $S_N'$
<b>Messlauf 8</b> Proben 1 – 24	Aktivierung:  Ausheizen bis 500°C oder höher	
<b>Messlauf 9</b> Proben 1 – 24	Testdosis  Ausheizen bis 260°C (Heizrate: 5 °C/s)	Aufnahme $S_{N+\beta}$

Die Dosis jeder Einzelprobe wird mittels der Formel  $D = \frac{S_N - S_0}{S_{N+\beta} - S_0'} \cdot D_\beta$  berechnet.

## A 8 Zitierte und weiterführende Literatur

- ADAMIEC, G., STONEHAM, D., & GÖKSU, H. Y., (1997): *Accident dose estimation using porcelain. A comparison between different TL methods*, Radiat. Meas. 27, S. 389-392.
- AITKEN, M.J., (1985): *Thermoluminescence Dating*, Academic Press.
- AKSELROD, M., KORTOV, V., KRAVETSKY, D., & GOTLIB, V., (1990): *Highly Sensitive Thermoluminescent Anion-Defect  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Single Crystal Detectors*, Radiat. Prot. Dosim. 33, 1-4, S. 119-122.
- BAILIFF, I.K., (1997): *Retrospective dosimetry with ceramics*, Radiat. Meas. 27, S. 923-941.
- BAILIFF, I.K., & AITKEN, M.J., (1980): *The use of TL dosimetry for the evaluation of internal beta dose-rate in archaeological dating*, Nucl. Instrum. and Methods 173, S. 423 -429.
- BAILIFF, I.K., & BARNETT, S.M., (1994): *Characteristics of infrared-stimulated luminescence from feldspar at low temperatures*, Radiat. Meas. 23, S. 541-545.
- BELL, W.T., (1979): *Thermoluminescence dating: radiation dose-rate data*, Archaeometry 21, S. 243-245.
- BOUGROV, N.G., GÖKSU, H.Y., HASKELL, E., DEGTEVA, M.O., MECKBACH, R., & JACOB, P., (1998): *Issues in the reconstruction of environmental doses on the basis of thermoluminescence measurements in the Techa riverside*, Health Physics 75, S. 574-583.

- DULLER, G.A.T., & WINTLE, A.G., (1991): *On infrared stimulated luminescence at elevated temperatures*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 18, S. 379-384.
- GÖKSU, H.Y., (1996): *Luminescence methods in retrospective dosimetry using porcelain. Effects of low level radiation for residents near Semipalatinsk Nuclear Test Site*, Proceedings of the Second Hiroshima International Symposium, Hiroshima, July 23-25, 1996 Eds. M. Hoshi, J. Takada, R. Kim and Y. Nitta Daigaku Letter Press Co. Ltd Hiroshima, Japan, S. 251-259.
- GÖKSU, H.Y., BAILIFF, I., BØTTER-JENSEN, L., & HÜTT, G., (1995): *Interlaboratory beta source calibration using TL and OSL on natural quartz*, Radiat. Meas. 24, 4, S. 479-483.
- GÖKSU, H.Y., & BULUR, E., (1999): *Beta dosimetry using thin layer  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C TL detectors*, Radiat. Prot. Dosim. 84, S. 451-457.
- GÖKSU, H.Y., HEIDE, L.M., BOUGROW, N.G., DALHEIMER, A., MECKBACH, R. & JACOB, P., (1996): *Depth dose distribution in bricks determined by thermoluminescence and by Monte Carlo calculation for dose reconstruction*, Appl. Radiat. Isot. 47, 4/2, S. 433-440.
- GÖKSU, H.Y., STONEHAM, D., BAILIFF, I.K., & ADAMIEC, G., (1998): *A new technique in retrospective dosimetry: Pre-dose Effect in the 230°C TL Glow Peak of Porcelain*, Applied Radiation and Dosimetry 49, S. 99-104.
- GÖKSU, H.Y., WIESER, A., STONEHAM, D., BAILIFF, I.K., & FIGEL M., (1996): *EPR, OSL, TL and Spectral Studies of porcelain*, Appl. Radiat. Isot. 47, 11/12, S. 1369-1374.

- HASKELL, E.H., (1993): *Accident dosimetry using environmental materials*, Radiat. Prot. Dosim. 47, S. 297-303.
- HÜBNER, S., & GÖKSU, H.Y., (1997): *Retrospective dosimetry using OSL-pre-dose effect in porcelain*, Appl. Radiat. Isot. 48, S. 231-235.
- MCKEEVER, S.W.S., (1985): *Thermoluminescence of Solids*, Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- MECKBACH, R., BAILIFF, I.K., GÖKSU, H.Y., JACOB, P., & STONEHAM, D., (1996): *Calculation and Measurement of Dose-Depth distribution in Bricks*, Radiat. Prot. Dosim. 66, 1-4, S. 183-186.
- NAMBI, K.S.V., & AITKEN, M.J., (1986): *Annual dose conversion factors for TL and ESR dating*, ARCHAEOMETRY 28, S. 202-205.
- NIEDERMAYER, M., GÖKSU, H.Y., DALHEIMER, A., & BAYER, A., (2000): *Infrared (IR) Stimulated Luminescence from Modern Bricks in Retrospective Dosimetry Applications*, Radiat. Meas. 32, S. 825-832.