

## Datowanie luminescencyjne. Konstrukcja napromieniacza do weryfikacji efektu mocy dawki.

**Streszczenie** Znając wartość naturalnego tła promieniowania można sposobem datować materiały archeologiczne i geologiczne metodami luminescencyjnymi. Szacujemy wiek porównując dawkę naturalną z dawką laboratoryjną. Moce tych dawek różnią się o wiele rzędów wielkości. Nie wiadomo, czy takie porównanie jest uzasadnione. W artykule przedstawiono wyniki teoretyczne i doświadczalne dotyczące efektu mocy dawki oraz koncepcję kontrolowanego elektronicznie napromieniacza do testowania tego efektu.

**Abstract.** Knowing the value of the natural radiation background, it is possible to estimate the age of archaeological and geological materials using luminescence methods. We estimate the age by comparing the natural dose with the laboratory one. The dose rates for these two cases doses may differ by many orders of magnitude. It is not known whether such a comparison is justified. The article presents theoretical and experimental results concerning the dose rate effect as well as the concept of an electronically controlled irradiator to test this effect. (**Luminescence dating. Design of the irradiator to verify the dose rate effect.**)

**Słowa kluczowe:** luminescencja, datowanie, optycznie stymulowana luminescencja (OSL), termoluminescencja (TL).

**Keywords:** luminescence, dating, optically stimulated luminescence (OSL), thermoluminescence (TL).

### Wprowadzenie

Badając przeszłość, możemy polegać na tych właściwościach materii, które są trwałe lub zmieniają się w łatwy do przewidzenia sposób. Jedną z takich cech materii jest promieniowanie jonizujące. Promieniowanie to występuje na Ziemi od milionów lat. Składa się z wysokoenergetycznych fotonów, elektronów i ciężkich cząstek. Jest nieustannie obecne w środowisku naturalnym, głównie ze względu na powszechnie występujące radioizotopy i promieniowanie pochodzące z kosmosu.

Już kilka dekad temu odkryto, że w przyrodzie istnieją minerały, które "pamiętają" dawkę pochłoniętego promieniowania. Informacja ta może być przechowywana przez tysiące, a nawet miliony lat. Ten naturalny zegar mierzy czas, jaki upłynął od ostatniego kontaktu badanego minerału z dostateczną ilością ciepła (np. podczas erupcji wulkanu czy wypalania ceramiki) lub światła słonecznego. Nagromadzoną dawkę można odczytać w laboratorium. W ten sposób możliwe jest obliczenie wieku minerału za pomocą prostej zależności [1,2]:

$$(1) \quad \text{Wiek } [a] = \frac{\text{dawka\_naturalna } [Gy]}{\text{moc\_dawki } [Gy \cdot a^{-1}]}$$

Tę metodę stosujemy często do datowania różnych materiałów archeologicznych (np. porcelana, cegły) i geologicznych (osady czwartorzędowe). Moc dawki można wyznaczyć z bezpośrednich pomiarów lub stężenia radionuklidów w otoczeniu badanego materiału. Dawkę naturalną mierzymy w laboratorium wykorzystując zjawisko termoluminescencji (TL) lub optycznie stymulowanej luminescencji (OSL). Dawka jest szacowana przez porównanie odczytu TL lub OSL dla naturalnego minerału z krzywą TL/OSL otrzymaną po ekspozycji na promieniowanie tego minerału w warunkach laboratoryjnych.

Głównym problemem datowania luminescencyjnego są różne warunki wzbudzenia. Naturalna dawka jest dostarczana z bardzo małą mocą w ciągu tysięcy lub milionów lat. Pobudzenie laboratoryjne jest znacznie szybsze. W niektórych przypadkach moc dawki laboratoryjnej może być większa nawet o 10 rzędów wielkości. Istnieją pewne teoretyczne argumenty, że te dwa typy wzbudzenia nie są identyczne. Nazywamy to efektem mocy dawki. Dowody eksperymentalne są jednak bardzo słabe. Do tej pory nie ma ewidentnych dowodów

przemawiających za istnieniem lub nieistnieniem efektu mocy dawki. Brak systematycznych, eksperymentalnych badań jest dość zastanawiający, biorąc pod uwagę znaczenie problemu dla dokładności datowania luminescencyjnego jak i ogromną popularność tej metody. Jest to prawdopodobnie najważniejszy, wciąż nierozwiązany problem w datowaniu luminescencyjnym obiektów geologicznych i archeologicznych.

W artykule przedstawimy wybrane wyniki teoretyczne i doświadczalne dotyczące efektu mocy dawki oraz koncepcję napromieniacza umożliwiającego porównanie detektorów napromienionych różną mocą dawki w zakresie kilku rzędów wielkości.

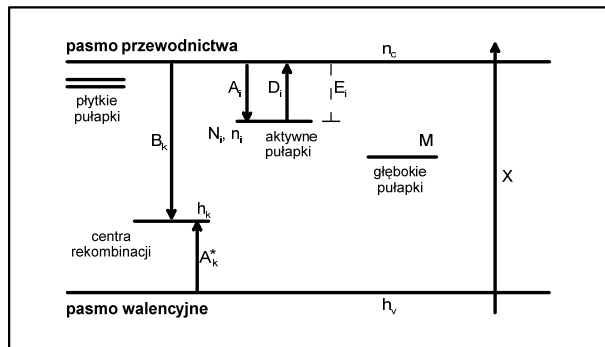
### Efekt mocy dawki – podstawy i przewidywania teoretyczne

Luminescencję długożyciową obserwujemy tylko w izolatorach, zwykle krystalicznych, z dużą przerwą energetyczną [2,3]. Luminescencja powstaje na defektach sieci krystalicznej. Defekty powodują powstanie zlokalizowanych przestrzennie poziomów wewnątrz przerwy energetycznej izolatora. Część z nich pełni rolę pułapek nośników ładunku, w którym nośniki (np. elektrony) mogą spędzić bardzo długi czas – nawet miliony lat w temperaturze pokojowej. Pułapki zapełniane są podczas ekscytacji materiału promieniowaniem jonizującym.

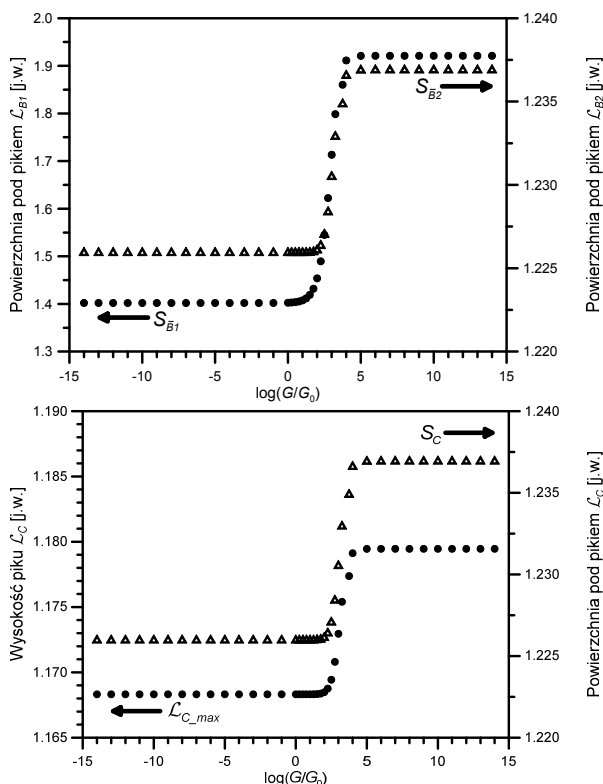
Na Rys. 1 symbol X oznacza przejścia pasmo-pasmo generowane podczas ekscytacji promieniowaniem jonizującym. Wolne nośniki rekombinują ze sobą bądź są wychwytywane przez centra pułapkowe dla elektronów (przejścia  $A_i$ ) i dziur ( $A_k$ ). Luminescencja następuje po uwolnieniu nośnika z aktywnej pułapki (D) i jego sukcesywnej rekombinacji ( $B_k$ ). By uwolnić nośnik z pułapki konieczna jest stymulacja.

W praktyce dozymetrycznej wykorzystywane są dwa zjawiska luminescencyjne – termoluminescencja (TL) oraz optycznie stymulowana luminescencja (OSL). Oba zjawiska są dwuetapowe – po napromienieniu próbka/detektor może być przechowywany, praktycznie przez dowolnie długi okres czasu. Uwalnianie luminescencji następuje pod wpływem czynnika zewnętrznego. W przypadku TL czynnikiem tym jest ciepło – detektor jest podgrzewany, zazwyczaj liniowo ze stałą szybkością. Podczas ogrzewania rejestrujemy (przeważnie za pomocą fotopowielacza) tzw. krzywą jarzenia (*glow curve*). W technice OSL

napromieniony detektor poddaje się stymulacji bardzo silnym światłem o długości fali  $\lambda_s$  (np. światło zielone). Światło to powoduje emisję luminescencji. Jej część w zakresie krótkofalowym  $\lambda < \lambda_s$  (zwykle ultrafiolet) można zarejestrować, odcinając się od bardzo silnej składowej  $\lambda_s$  odpowiednio dobranym układem filtrów.



Rys.1. Prosty schemat energetyczny izolatora, w którym defekty sieci krystalicznej tworzą zlokalizowane poziomy pułpki i rekombinacyjne. X oznacza przejścia pasmo-pasmo generowane podczas ekscytacji promieniowaniem jonizującym

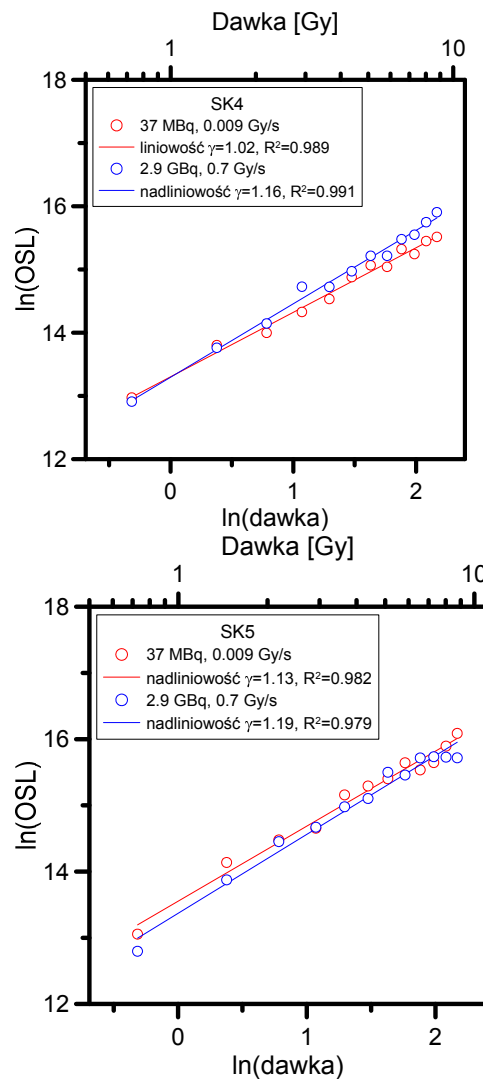


Rys.2. Ilustracja efektu mocy dawki dla modelu przejść częściowo zlokalizowanych (SLT). Na osi poziomej podano moc dawki (G). Na osiach pionowych podano powierzchnie pod pikiem TL dla rekombinacji zlokalizowanej (wykres górny) oraz powierzchnie i wysokość pików dla rekombinacji zdelokalizowanej (wykres dolny)

Odpowiedź luminescencyjną detektora TL lub OSL można symulować numerycznie układając dla szczególnych przypadków powyższego modelu odpowiedni układ równań różniczkowych. Dla najprostszego modelu pułpkowego, zakładającego brak korelacji przestrzennej między pułapkami i centrami rekombinacji (*the simple trap model* – STM [2,3]) zależność odpowiedzi TL od mocy dawki wyliczyli już w 1981 roku Chen, McKeever i Durrani [4]. Poprawione rachunki przedstawili Chen i Leung w 2000 roku [5], jednak wyniki były podobne i sugerowały możliwość wystąpienia efektu mocy dawki w formie

„schodka” – tj. z inną (nawet o kilkadziesiąt procent) odpowiedzią detektora dla skrajnie małych i skrajnie dużych dawek.

W 2010 roku Orzechowski i Mandowski [6] zbadali efekt mocy dawki dla bardzo złożonej, a przez to bardziej realistycznej sytuacji jednoczesnych przejść zlokalizowanych i zdelokalizowanych (tzw. model SLT [7,8]). Uwzględniono wszystkie etapy TL, w tym wzbudzenie, przechowywanie próbek i odczyt. Ostateczną odpowiedź analizowano zarówno pod względem maksimum pików TL, jak i powierzchni pików. Okazało się, że ten model także przewiduje istnienie efektu mocy dawki dla wszystkich zlokalizowanych i zdelokalizowanych pików TL. Obliczenia wykonano w zakresie 30 rzędów wielkości mocy dawki, jednak obszar istotnych zmian był wąski (por. Rys. 2).



Rys.3. Charakterystyki dawkowe OSL dla halitu (NaCl) wykonane przy użyciu dwu źródeł o różnych mocach dawek:  $9 \cdot 10^{-3}$  Gy/s i  $7,3 \cdot 10^{-1}$  Gy/s [17]

### Efekt mocy dawki – dane eksperymentalne

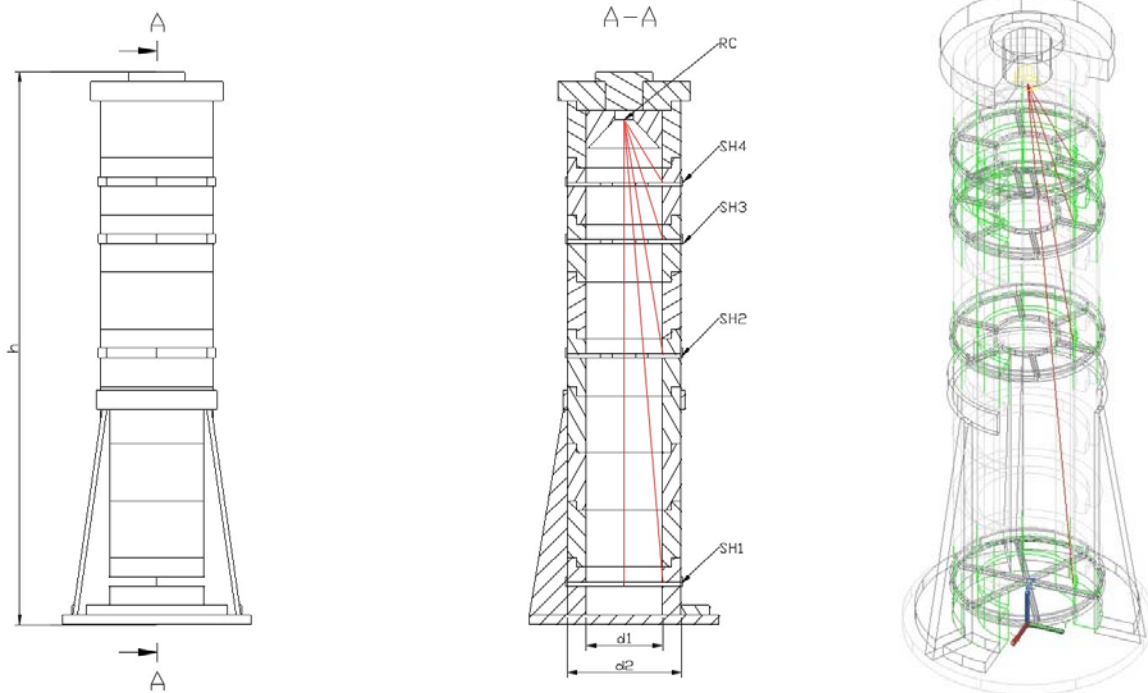
Niestety, prac eksperymentalnych na temat zależności odpowiedzi luminescencyjnej detektora TL lub OSL od mocy dawki nie ma zbyt wiele. Większość badaczy zakłada po prostu, że zależności takiej nie ma. W latach 60-tych Karzmark i in [9] oraz Tochilin i Goldstein [10] badali odpowiedź TL kryształów LiF i nie stwierdzili zależności od mocy dawki w zakresie ponad siedmiu rzędów wielkości. Interesujące jest to, że zupełnie odwrotny wynik (potwierdzający efekt mocy dawki) odnotowali kilkanaście

lat później Wintersgill i Townsend [11] dla tych samych kryształów. Rzecz jasna, wynik uzyskany dla LiF nie przesądza tej kwestii dla innych materiałów. Nieco wcześniej, w 1977 roku, Hsu i Weng [12] badając TL, opisali istnienie efektu mocy dawki w kryształach CaSO<sub>4</sub>:Dy. Używali dwu czytników TL. Na jednym z nich zaobserwowali schodkową zmianę, na drugim nie. Wynik był więc niejednoznaczny.

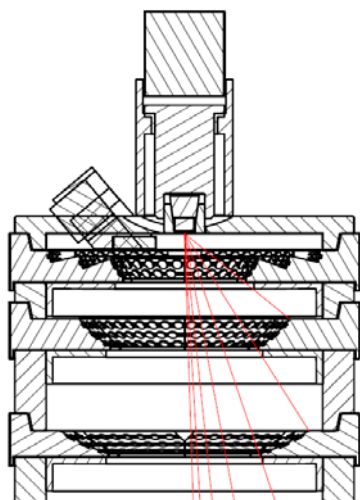
#### Napromniacz do weryfikacji efektu mocy dawki

Weryfikacja doświadczalna efektu mocy dawki wymaga zastosowania specjalnych napromniaczy. Źródła promieniotwórcze o dużych mocach są stosunkowo łatwo

dostępne. Główna trudność polega na zapewnieniu stabilnego naświetlenia próbek z użyciem bardzo małej mocy dawki w bardzo długiej skali czasu. W tym celu proponujemy zastosowanie napromniacza, którego schemat ideowy pokazany jest na Rys. 4 i 5. Napromniacz ma kształt rury wykonanej w większości z polietylenu HDPE. Źródło promieniotwórcze usytuowane jest na górze, a próbki do naświetleń wkładamy do rury na specjalnych szufladkach, które rozlokowane są na kilku wysokościach. Kształt szufladek i ich rozmieszczenie są tak dobrane, by próbki z górnych rzędów nie przesłaniały tych położonych niżej. Cały napromniacz jest światłoszczelny, by uniknąć zjawiska wybielenia optycznego.



Rys.4. Schemat ideowy napromniacza do weryfikacji efektu mocy dawki



Rys.5. Schemat ideowy napromniacza do weryfikacji efektu mocy dawki – część górna i miejsce na próbki

W założeniu, próbki najniżej położone, naświetlane będą bardzo małą mocą dawki przez bardzo długi czas, liczony nawet w latach. Dla zapewnienia jednorodności napromieniowania źródło będzie obracane wokół własnej osi przez silnik krokowy z częstotliwością rzędu jednego

obrotu na minutę, zadawaną przez użytkownika. Dla zapewnienia właściwych warunków pomiaru i bezpieczeństwa personelu napromniacz będzie wyposażony w szereg czujników dostarczających informację m.in. o położeniu głowicy ze źródłem, jej prędkości obrotowej i natężeniu światła wewnątrz napromniacza.

Dane optyczne będą zbierane z rozdzielczością 12 bitów. Układ sterujący jest wyposażony w zegar RTC i umożliwi zapis historii pracy urządzenia na zewnętrznych nośnikach pamięci poprzez interfejs USB. Jeden napromniacz o wysokości ok. 3 m pomieści ponad tysiąc próbek. Przy takiej wysokości możliwe jest rozmieszczenie siedmiu, nieprzesłaniających się nawzajem, poziomów szuflad. Dla źródła promieniowania gamma, szacunkowa dynamika mocy dawki dla tych skrajnych położen wyniesie

$$(2) \quad \frac{\Phi_1}{\Phi_7} \sim \left(\frac{r_7}{r_1}\right)^2 \sim \left(\frac{2911}{85,1}\right)^2 \sim 1,2 \cdot 10^3$$

Uwzględniając dodatkowy poziom  $r_0$ , który można wykorzystać do krótkich naświetleń, zakładana dynamika zwiększy się do wartości

$$(3) \quad \frac{\Phi_0}{\Phi_7} \sim \left(\frac{r_7}{r_0}\right)^2 \sim \left(\frac{2911}{30}\right)^2 \sim 9,4 \cdot 10^3$$

a więc niemal czterech rzędów wielkości. Naświetlenia dla bardzo dużych mocy dawek można wykonać osobno, ze źródłami o większej mocy. Dzięki temu dostępny zakres badanej dynamiki naświetleń może wynieść ok.  $10^7$ . Po naświetleniu odczyt dawki będzie dokonywany z użyciem nowoczesnych czytników OSL [18,19] i spektralnie rozdzielczej termoluminescencji [20,21].

### Podsumowanie

W datowaniu luminescencyjnym stosowanym w archeologii i geologii konieczne jest porównanie dawek promieniowania jonizującego zaabsorbowanego przez materiał w różny sposób. W warunkach naturalnych dawka jest deponowana bardzo wolno – zwykle przez tysiące lat. W laboratorium naświetlamy materiał w kilka lub kilkadziesiąt minut. Nie wiadomo, czy tak skrajnie różne moce dawek dają takie same efekty, nawet przy tej samej dawce całkowitej.

Istnieją silne przesłanki teoretyczne, że rezultat (czyli luminescencja TL lub OSL) nie zawsze jest taki sam. Występować może więc tzw. efekt mocy dawki. Doświadczalnie nie udało się jednoznacznie potwierdzić takiej tezy. Nie zdołano też jej zaprzeczyć. Ze względu na duże znaczenie praktyczne tego zjawiska, istnieje pilna potrzeba eksperymentalnej weryfikacji efektu mocy dawki. Zwłaszcza dla tych materiałów, które są najczęściej używane do datowania w archeologii i geologii, takich jak kwarc i skalenie.

Podstawowym narzędziem weryfikacji doświadczalnej efektu mocy dawki jest sterowany elektronicznie napromieniacz. Urządzenie to umożliwia naświetlanie próbek przez bardzo długi okres czasu przy małej mocy dawki. Wewnątrz tego urządzenia naświetlanie materiałów jest realizowane z mocą dawki różniącą się ok.  $10^4$  razy. Zastosowanie dodatkowych źródeł zewnętrznych o dużej mocy (czas naświetlenia jest wtedy krótki) pozwoli zwiększyć dynamikę do wartości ok.  $10^7$ .

**Podziękowania.** Praca naukowa finansowana przez Narodowe Centrum Nauki w ramach projektu badawczego 2018/31/B/ST10/03966.

**Autorzy:** dr hab. Arkadiusz Mandowski, prof. UJD, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [a.mandowski@ujd.edu.pl](mailto:a.mandowski@ujd.edu.pl); dr hab. Ewa Mandowska, prof. UJD, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [e.mandowska@ujd.edu.pl](mailto:e.mandowska@ujd.edu.pl); mgr Robert Smyka, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [perister66@gmail.com](mailto:perister66@gmail.com); dr Renata Majgier, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [renata.majgier@ujd.edu.pl](mailto:renata.majgier@ujd.edu.pl); dr Katarzyna Szufa, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [k.szufa@gmail.com](mailto:k.szufa@gmail.com); mgr Krzysztof Maternicki, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [k.maternicki@ujd.edu.pl](mailto:k.maternicki@ujd.edu.pl);

### LITERATURA

- [1] Aitken M.J., *Thermoluminescence dating*, Academic Press, 1985.
- [2] McKeever S.W.S., Moskovitch M., Townsend P.D., *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses*, Nuclear Technology Publishing, Ashford, Kent TN23 1YW, England, 1995.
- [3] Chen R., McKeever S.W.S., *Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena*, World Scientific, Singapore, 1997.
- [4] Chen R., McKeever S.W.S., Durrani S.A., Solution of the kinetics equations governing trap filling. Consequences concerning dose dependence and dose-rate effects, *Phys. Rev. B* 24 (1981), 4931–44
- [5] Chen R., Leung P.L., A model for dose-rate dependence of thermoluminescence intensity, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 33 (2000), 846–850
- [6] Orzechowski J., Mandowski A., Dose-rate effect in the model of semi-localized transitions (SLT), *Radiat. Meas.* 45 (2010), 295–299
- [7] Mandowski A., The model of semi-localized transitions, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 38 (2005), 17–21
- [8] Mandowski A., Topology-dependent thermoluminescence kinetics, *Radiat. Prot. Dosim.* 119 (2006), 23–28
- [9] Karzmark C.J., White J., Fowler J.F., Lithium fluoride thermoluminescence dosimetry, *Phys. Med. Biol.* 9 (1964), 273–280
- [10] Tochilin E., Goldstein N., Dose-rate and spectral measurements from pulsed x-ray generators, *Health Phys.*, 12 (1966), 1705–1709
- [11] Wintersgill M.C., Townsend P.D., The non-linear response of thermoluminescence at different dose-rates, *Radiat. Effects* 38 (1978), 113–118
- [12] Hsu P.C., Weng P.S., In response to “low exposure rate dependence of CaSO<sub>4</sub>:Dy TLDs”, *Nucl. Instrum. Methods* 147 (1977), 453
- [13] Groom P.J., Durrani S.A., Khazal K.A.R., McKeever S.W.S. The dose-rate dependence of thermoluminescence and sensitivity in quartz, *Eur. PACT J.* 2 (1978), 200–210
- [14] Kvasnička J., Dose-rate and flux density of cosmic muons estimate by TLD method, *Health Phys.* 36 (1979), 521
- [15] Kvasnička J. TL response dependence on the dose-rate and its consequences, *Int. Appl. Radiat. Isot.* 34 (1983), 713–715
- [16] Chawla S., Gundu Rao T.K., Singhvi A.K., Quartz thermoluminescence dose and dose-rate effects and their implications, *Radiat. Meas.* 29 (1998), 53–63
- [17] Biernacka M., Majgier R., Smyka R., Maternicki K., Liang M., Mandowski A., OSL properties of halite from Kłodawa salt mine, *Radiat. Meas.* 106 (2017), 459–463
- [18] Mandowska E., Smyka R., Mandowski A., Kieszkowski R., Majgier R., Czytnik OSL z nieliniową funkcją stymulacji optycznej, *Elektronika : konstrukcje, technologie, zastosowania* 59, nr 9 (2018), 12–15
- [19] Mandowska E., Mandowski A., Bluszcz A., Adamiec G., Bilski P., Marczevska B., Chruścińska A., Przegiętka K., Nowe metody stymulacji optycznej dla czytnika TL/OSL Jupiter, *Przegląd Elektrotechniczny* 92, nr 9 (2016), 62–65
- [20] Mandowska E., Biernacka M., Mandowski A., Właściwości spektralne i dozymetryczne polikrystalicznego chlorku sodu – naturalnego detektora promieniowania jonizującego, *Przegląd Elektrotechniczny* 95, nr 9 (2019), 169–171
- [21] Mandowska E., Majgier R., Mandowski A., Influence of optical bleaching on spectrally resolved thermoluminescence in beta irradiated potassium chloride pellets, *Radiation Physics and Chemistry* 173 (2020), 108876