

Wanda STAŃSKA-PRÓSZYŃSKA

Marek PRÓSZYŃSKI

Laboratorium wieku TL w Warszawie^{x)}TERMOLUMINESCENCYJNE WSKAŹNIKI WIEKU OSADÓW GEOLOGICZNYCH -
SPOSTRZEŻENIA Z LAT 1973-1983

Streszczenie. Wiadomo, że wystawienie próbki gruntu na światło słoneczne kasuje tylko część jej zasobu potencjalnej termoluminescencji.

Sprawdziliśmy doświadczalnie, że promieniowanie gamma, a także naświetlania lampą szklarniową (rtęciową z lumiforem) nie zmieniają resztkowego poziomu TL. Natomiast wstępne orientacyjne badania wskazują że promieniowanie gamma może w pewnym stopniu zmieniać czułość próbki, co wskazywałoby, że zmienia ono wewnętrzna strukturę kryształu (a więc ilość aktywnych pułapek). Jednak jeśli nawet takie działanie zachodziło, to zmiana czułości nie przekraczała +20% lub -10%.

W innym doświadczeniu sprawdzaliśmy, czy termoluminescencyjna skuteczność promieniowania alfa zależy od zmniejszania lub zwiększania wilgotności gruntu. Uzyskaliśmy wyniki następujące:

<u>Il</u> lub <u>głina</u>	Skuteczność <u>alfa</u>
prawie suche (ale duża wilgotność atmosfery)	przyjęto 100%
suche (wilgotność atmosfery - około 40%)	około 60%
mokre - spod zwierciadła wody (nasycone)	" 10%
<u>Piasek</u>	
prawie suchy (ale duża wilgotność atmosfery)	przyjęto 100%
suchy (wilgotność atmosfery - około 40%)	około 74%
mokry - spod zwierciadła wody (nasycony)	" 17%

Termoluminescencyjną metodę wskaźników wieku osadów sdożano do chwili obecnej opracować jedynie w ogólnych zarysach. Teoretycznym i doświadczalnym podstawom tej metody poświęcono w kilku krajach liczne prace naukowe i referaty na międzynarodowych konferencjach specjalistycznych dotyczących głównie dozymetrii i luminescencji minerałów. Dane bibliograficzne o nowszych pracach z dziedziny "chronometrii", termoluminescencyjnej znaleźć można w przeglądowym artykule Anny Wintle z 1982 r., a także w arty-

^{x)} Obecnie: Zespół Chronostratygrafii Plejstocenu przy Polskim Towarzystwie Geograficznym. Laboratorium mieści się w pracowni izotopowej fródeł zamkniętych na Uniwersytecie Warszawskim przy Wydziale Geografii i Studiów Regionalnych, Krakowskie Przedmieście 32.

kułach Vagoa Mejdhala oraz Galiny Hütt i A. Smirnowa - również z 1982 r. (Fact, 7, cz. 1). Główne zasady postępowania stosowane w laboratorium warszawskim przedstawiono w Sprawozdaniach Komitetu Badań Czwartorzędu PAN (Nr IV) z 1981 r., a niektóre wątpliwości co do wyników - w komunikacie z 1980 r. uwzględnionym w artykule Anny G. Wintle i D.J. Huntleya na stronie 39 pierwszego zeszytu *Quaternary Science Reviews*) z 1982 r.

Niektóre dane wchodzące do obliczeń jako ważne współczynniki nie są określane dostatecznie dokładnie, gdyż zjawiska geologiczne i fizyczne nie są lub nawet nie mogą być rejestrowane i badane precyzyjnie. Dotyczy to szczególnie warunków wodnych - uwilgotnienia. Niezbędne dane zastępuje się wielkościami dowolnie założonymi lub uśrednionymi, za które nikt nie bierze odpowiedzialności, gdyż mają one określać nie stan dzisiejszy, lecz dawny, zależny od zmian klimatu i ewolucji sieci rzecznej. Wyniki obliczeń wieku geologicznego trzeba zatem traktować również jako jedynie przybliżone, bo oparte na niepewnych podstawach. Są to więc wskaźniki chronologiczne, a nie daty bezwzględne. Praktyczna przydatność tych wskaźników jest jednak niewątpliwa: jeśli bowiem na podstawie rozpoznania geologicznego można zbadać metodą termoluminescencyjną próbki odnieść do określonych epizodów zmian klimatycznych i jeżeli te epizody klimatyczne mogą być przyporządkowane do poznanej już chronologii astronomicznej, to uzyskane termoluminescencyjne wskaźniki wieku stanowiąc będą dokument potwierdzający prawidłowość powiązań. Serie wskaźników TL mogą stać się przybliżonymi datami, jeżeli dadzą się jednoznacznie powiązać chronologicznie z paleoklimatyczno-biostratygraficzną interpretacją długich profili lądowych i rdzeni pobranych z dna oceanów ze zmianami składu izotopowego i zasolenia wody, z chronologią zdarzeń paleomagnetycznych, z historią datowanych tarasów rafowych i brzegowych nadmorskich i podmorskich i kopalnych dolin oraz z datowanymi erupcjami.

Kwarc, skalenie i niektóre inne stałe ciała mineralne magazynują energię promieniowań jonizujących. Zmagazynowana energia może być z powrotem wydaloną w postaci światła jarzeniowego, co następuje głównie pod wpływem wzrostu temperatury lub pod działaniem naświetlenia promieniami krótkofalowymi - np. przez Słońce.

Gromadzenie potencjalnej energii TL - to skutek przenikania trzech rodzajów promieni wysyłanych przez pierwiastki radioaktywne uwięzione w skałach i w ziarnach minerałów: przez pierwiastki rodzin uranu i toru, przez izotop potasu (^{40}K) i minimalne ilości promieniotwórczego rubidu. W zjawisku tym uczestniczą również promienie kosmiczne, ale odgrywają one małą rolę i to tylko w warstwach gruntu, do których docierają od strony atmosfery, dla próbek pobranych z głębokości rzędu metra od powierzchni przyjmowaliśmy zwykle połowę energii otrzymywanej z kosmosu przez glebę na danej szerokości geograficznej i na danej wysokości nad poziomem morza: dla Niżu w Polsce połowa kosmicznej dawki rocznej wynosi według T. Niewiadomskiego i E. Ryby (1977) około 16 miliradów (0,016 centigray) dla

Zakopanego i Bierutowic nie przekracza 20 miliradów. Promieniowania kosmicznego nie uwzględniamy dla próbek wyjętych z głębokości kilkunastu metrów lub większej.

Wśród zbadanych w warszawskim laboratorium chronostratygrafii termoluminescencyjnej 222 próbek z różnych obszarów i różnych warstw można odzyskać takie utwory, które w ciągu roku produkowały i magazynowały zaledwie kilkadziesiąt miliradów jako zasób energii TL (jak np. w Warszawie prawobrzeżnej piaski z koryta Wisły w Kawęczynie sprzed 37 tysięcy lat radiowęglowych według oznaczenia na podstawie drewna wierzby^{xx}), ale zdarzały się i takie osady (jak np. łąki zastoiskowe z Kawęczyna sprzed około 20 tysięcy lat), które produkowały zasób TL dziesięć razy wydajniej.

Udział poszczególnych rodzajów promieniowania w produkcji tego zasobu bywa bardzo różny. Jako przykład może służyć grunt, w którym potas stanowi 1,6% suchej masy, uran - trzy części milionowe, a tor - jedną część stutysięczną. W takim gruncie promieniowanie gamma dostarcza co najmniej 24% energii jarzenia, promieniowanie beta wytwarza co najmniej 36% energii, a promieniowanie alfa - nie więcej niż 40%, przeważnie jednak znacznie mniej w przypadkach, gdy grunt jest nasycony wodą (mokry).

Do doświadczeń z promieniowaniem alfa używaliśmy przyrządu stosowanego przeważnie do neutralizacji ujemnych ładunków elektrostatycznych. Jest to zestaw płytek ceramicznych zawierających izotop plutonu ²³⁹Pu, zmontowanych w płaszczyźnie pod osłoną stalową. Pod płytkami, w odległości paru milimetrów umieszczaliśmy styropianową tackę z rozszanymi drobnymi ziarnami prawie czystego kwarcu. Czas ekspozycji wynosił 1 godzinę lub 10 godzin. Wzrost termoluminescencji ziarn wywołany promieniowaniem alfa porównano ze wzrostem jarzenia drugiej części preparatu poddanej działaniu znanych dawek promieniowania gamma kobaltu ⁶⁰Co. Z porównania wynikało, że w warunkach doświadczenia ziarna poddane promieniowaniu plutonowemu otrzymywały średnio 15,5 cGy na minutę, jeżeli były suche. Skuteczność promieniowania alfa zwiększyła się o 16,2%, gdy tackę nawilżyliśmy i gdy powietrze było utrzymywane w stanie nasycenia parą. Silne zmoczenie ziarn działa jednak odwrotnie, gdyż grube otoczki wodne stanowią ekran odbierający znaczną część energii alfa.

Zwiększenie lub zmniejszenie przenikalności cząstek alfa obserwowaliśmy też przy badaniu skuteczności promieniowania wysyłanego przez mięszce próbki gruntu; w odległości około 2,5 mm od płasko ściętej lub ubitej próbki znajdował się detektor alfa - siarczek cynku, a za nim fotopowielacz z przelicznikiem impulsów, bardzo słabe zawilgocenie próbki zwiększało skuteczność promieniowania (podobnie jak w doświadczeniu z napromienianiem próbki - wspomnianym poprzednio), próbka słabo uwilgotniona dawała w cią-

^{xx}) Oznaczenie radiowęglowe zawdzięczamy uprzejmości p. Dyr. A. Kanwiszera i pracowników laboratorium ¹⁴C Muzeum Archeologicznego w Łodzi, a oznaczenia rodzajowe drewna - p. Prof. Zajączkowskiemu z SGGW - Akad. Roln. w Warszawie.

gu godziny około 20 impulsów alfa w przeliczeniu na 1 cm^2 powierzchni podstawionej pod detektor, a próbka ta po wysuszeniu dała przy wilgotności powietrza wynoszącej około 40% - tylko 12 impulsów z 1 cm^2 .

Silne nawilżenie znacznie zmniejsza ilość rejestrowanych impulsów, a więc zapewne i skuteczność termoluminescencyjną alfa. W warunkach doświadczenia otrzymaliśmy z 1 cm^2 tylko 3 impulsy, a ten sam ił wydobyty bezpośrednio spod wody gruntowej, zawierający 23% wody w stosunku do masy mokrej próbki, dawał średnio mniej niż 2 impulsy z 1 cm^2 w ciągu godziny.

Podobne badanie wykazało, że zależnie od zawartości wody zmienia się skuteczność promieniowania alfa także w przypadku, gdy promieniowanie wychodzi z gruntu piaskowego; nasycenie wodą próbki pobranej ze starych osadów korytowych Wisły w Kawęczynie spowodowało spadek zliczeń w stosunku do piasku suchego o 77%, natomiast skuteczność promieniowania piasku "świeżego" (słabo wilgotnego) była większa o 35% od tej, jaką wykazywał piasek suchy.

Tak wielkich różnic skuteczności promieniowania alfa w gruncie mokrym i suchym nie uwzględniano dotychczas przy obliczaniu dawki rocznej, na której opiera się określanie wskaźnika wieku. Stosowano wzór podany w pracy Zimmermana (1971), uzupełniony przez Bowman (1976). Według tego wzoru skuteczność alfa w iłach Kawęczynskich zawierających 23% wody (czyli 30% w stosunku do suchej masy) wyniosłaby około 69% skuteczności przyjętej dla iłu suchego. W naszym doświadczeniu ił mokry dał tylko około 16% liczby impulsów iłu suchego, a piasek mokry dał 23% impulsów wysyłanych w stanie suchym. Promieniowanie alfa w zasięgu wody gruntowej bierze więc bardzo ograniczony udział w tworzeniu zasobu termoluminescencji ziarn osłoniętych otoczkami wodnymi. W przypadku ziarn kwarcowych o średnicy 0,1 mm lub większych, które stale znajdowały się w zasięgu wody, promieniowania alfa można nie brać pod uwagę, ponieważ jego rola jest znikoma.

Skuteczność promieniowania beta oceniono dokładniej dopiero w 1981 roku (W.T. Bell i V. Mejdahl). Określanie wydajności źródeł beta w tworzeniu zasobu TL przez porównywanie ze źródłami gamma bywa zawodne, gdyż skuteczność promieniowania beta jest uzależniona od wielu czynników. Z tego powodu do badań porównawczych używamy źródeł gamma, głównie bomby kobaltowej. Stosowanie do tego celu lampy rentgenowskiej zarzuciliśmy.

Wielokrotnie próbowaliśmy określać wielkość dawek ekspozycyjnych gamma pochodzących z naszego źródła za pomocą różnych dawkomierzy przez porównanie z innymi źródłami, jednak wyniki okazywały się niezgodne. Ostatecznie uzyskaliśmy możliwość dokonania jednoznacznych porównań dawek ekspozycyjnych w ustalonym położeniu w centrum bomby kobaltowej Zakładu Radiochemii i Chemii Radiacyjnej Uniwersytetu Warszawskiego z określonymi ściśle dawkami w źródle cezowym Laboratorium Badawczego Archeologii i Historii Sztuki Uniwersytetu w Oxfordzie oraz w automatycznym urządzeniu ze źródłem kobaltowym w Instytucie Onkologicznym w Warszawie. Jako dawkomierzy użyto pył lessowy oraz sproszkowany obsydian o bardzo korzystnych wła-

ściwościach w zakresie temperatur stosowanych w oznaczeniach chromatycznych. Uzyskano zgodność wyników^{xxx}). Oznaczenia radiochemiczne metodą Frickego dały wyniki zbliżone. Skontrolowanie warunków ekspozycji przez porównanie z dwoma źródłami niezależnymi traktowanymi jako wzorce uważamy za niezbędny warunek instalowania i prowadzenia laboratorium. Wszystkie dawniejsze oznaczenia oparte były na dwukrotnym porównaniu naszego małego źródła kobaltowego z innymi warszawskimi "wzorcami" (w Centralnym Laboratorium Ochrony Radiologicznej, a później w Instytucie Badań Jądrowych na Żeraniu). Jednak dodatkowe porównanie ze źródłem należącym do Laboratorium Promieniowania Jonizującego w Polskim Komitecie Normalizacji i Miar dało wynik niezgodny z poprzednimi. Obecnie na podstawie zgodnego wyniku porównań między Instytutem Onkologii a Laboratorium Oxfordzkim poprawiamy wszystkie oznaczenia wykonane przed tą kontrolą wprowadzając do obliczeń odpowiedni współczynnik korekcyjny.

Niezbędną czynnością przy określaniu termoluminescencyjnych wskaźników wieku osadów jest "kalibracja" preparatów przygotowanych z próbek naturalnych. Obecnie po określeniu metodą wagową wilgotności każdej próbki w stanie, w jakim była pobrana, oddziela się część przeznaczoną do badań promieniotwórczości naturalnej (0,5 kg powietrznie suchej masy), a z reszty pobiera się materiał na preparaty frakcji drobnej (około 11-8 mikrometrów) i frakcji grubszych od 11 μm . Po rozgrznięciu i odwęgleniu oraz odrzuceniu na sicie grubych ziarn usuwa się wytrącenia żelaziste redukując zakleszczając i wypłukując Fe (hydrosulfit i kwas cytrynowy), niekiedy stosuje się też do usuwania próchnicy kwas azotowy, a do rozgrznięcia 10-minutową kąpiel w myjni ultradźwiękowej z wodą destylowaną i węglanem sodu jako dyspergentem (1,5 g/litr). Zarówno przed tą kąpielą, jak i po niej preparat jest dokładnie przepłukiwany wodą destylowaną. Do frakcjonowania używamy siatek nylonowych o prześwicie 90 i 50 μm oraz cylindrów sedymentacyjnych. Wszystkie czynności z preparatami prowadzone są w świetle czerwonym, a preparaty suszone są w ciemni i przechowywane w aluminiowych pudełeczkach. Z każdego preparatu oddziela się część przeznaczoną do naświetlania lampami rtęciowo-luminescencyjnymi, które z odległości 35-65 cm dają na stole luminację od 400 do 1400 nitów, zależnie od miejsca zajętego przez preparat rozsiany jak najcieniej na karcie papieru kredowego. Miejsca zmieniamy co kilka lub kilkanaście godzin, ponawiamy przy

^{xxx}) Panie: Dr inż. Irena Majenka i Mgr Joanna Rostkowska uprzejmie podjęły się napromienienia dawkomierzy określoną dawką gamma w Instytucie Onkologicznym. Kontrolne oznaczenia metodą Frickego w Instytucie Badań Jądrowych wykonała na naszą prośbę pani Dr Zofia Bułhak, a podobne badanie w Studium Radiochemii Uniwersytetu Warszawskiego był łaskaw podjąć p. Dr hab. Jan Niedzielski. Oznaczenia radiochemiczne różnią się o około +5% i o około -5% od wartości przyjętej przez nas na podstawie porównania dawkomierzy w Instytucie Onkologii i w Laboratorium Historii Sztuki w Oxfordzie, co było zapewne spowodowane głównie tym, że wymiary próbek z płynem dozymetrycznym i dawkomierzy stałych nie były jednakowe.

tym rozsiewanie przez siateczkę, aby światło bardziej równomiernie po-
działało na poszczególne ziarna.

W początkowym okresie naświetlania zasób TL zmniejsza się z minuty na
minutę bardzo wyraźnie, następnie rozładowywanie przebiega coraz wolniej.
Po 12 godzinach naświetlania w niektórych preparatach dalsza utrata pra-
wie ustała, w innych zachodziła w dalszym ciągu dość równomiernie podczas
następnych 12-godzinnych naświetlań. Energię, która rozładowuje się pod-
czas naświetlania, nazywamy chronometrycznym zasobem TL, rozumiejąc pod
tym pojęciem jednak tylko tę część rozładowywanej energii, która ujawnia
się w postaci światła jarzenia podczas ogrzewania preparatu poczynając od
temperatury 270°C do temp. 330°C z tempem wzrostu około 2° na sekundę. W
niektórych przypadkach zasób ten rozładowywał się prawie całkowicie w cią-
gu 24 godzin naświetlania lampami, w innych trzeba było na to w warunkach
naszych doświadczeń przynajmniej 48 godzin (pomiędzy 36 a 48 godziną
ubytki zasobu były już minimalne). To, co pozostaje po 48 godzinach, na-
zywamy TL resztkową. Tej części zasobu preparaty nie tracą już przez na-
świetlanie laboratoryjne, a jedynie przez ogrzewanie do temperatury rzędu
300°C lub wyższej.

Wielkość zasobu resztkowego, który pozostaje w ziarnach po naświetla-
niu, można porównywać z wielkością zasobu takich samych ziarn nie podda-
nych działaniu światła. Odejmując jedną z tych wielkości od drugiej o-
trzymujemy zasób chronometryczny maksymalny, tj. taki, jaki nagromadził-
by się w osadzie od czasu ostatniego transportu materiału, gdyby podczas
transportu doszło do całkowitego rozładowania dawniejszego zasobu chrono-
metrycznego.

Badając TL świeżo namulonych osadów Wisły oraz piasków obecnie nawie-
wanych stwierdziliśmy, że materiał tych osadów prócz TL resztkowej zawie-
ra znaczną część maksymalnego zasobu chronometrycznego, która nie została
wyładowana podczas transportu. Podobne zjawiska zachodziły w przeszłości
geologicznej, co uniemożliwia (a w każdym razie utrudnia) określanie wskaź-
ników wieku takich osadów. Sposób przybliżonego określenia dawnego zasobu
TL, jaki istniał w czasie sedymentacji, przedstawiony jest w pracy dok-
torskiej H. Prószyńskiej na podstawie jej badań w Laboratorium Godwina w
Cambridge.

Każdy zasób energii TL zawarty w ziarnach mineralnych możemy doświad-
czalnie określić ilościowo w jednostkach energii promienistej (Grayach)
przez porównanie: z jednej strony tej ilości światła, na jaką podczas o-
grzewania ziarn zamieni się badany zasób energii, a z drugiej strony -
ilości światła wydzielonego przez takie same i tak samo ogrzewane ziarna,
które były poprzednio napromienione w laboratorium dokładnie określonymi
(znanymi) dawkami energii promieniowania jonizującego. Ilości światła w
obu przypadkach określa się stosując zestaw złożony z zaprogramowanego
wygrzewacza z termoparą i z rejestratora automatycznego typu X-Y, na któ-
rym temperatura płytki grzejnej zaznacza się w kierunku X, a wielkość wy-

dzielanego światła w kierunku osi Y. Ziarna wygrzewa się w atmosferze gazu obojętnego (argonu).

Preparaty, które były długo naświetlane, utraciły już termoluminescencję chronometryczną. Takie preparaty poddaje się napromienianiu kalibracyjnemu. Im większą otrzymają dawkę, tym więcej dadzą światła podczas wygrzewania w laboratorium. Jeśli jednak w kolejnych powtórzeniach zwiększać dawki promieniowania, to okaże się, że przyrost ilości światła wysyłanego podczas wygrzewania ziarn nie zawsze bywa proporcjonalny do dawek otrzymywanych przez preparaty, gdyż wrażliwość materiału mineralnego na działanie jonizujące powyżej pewnej granicy zaczyna maleć w miarę wzrostu dawek. Jeśli więc chcemy na podstawie ilości światła określić dawkę, jaką materiał w przeszłości otrzymał, musimy preparatowi porównawczemu przygotowanemu z tego materiału przez długotrwałe naświetlanie zaaplikować ilość energii promienistej równą naturalnej dawce otrzymanej w przeszłości. Wielkość tej nieznannej dawki możemy ustalić jedynie przez kolejne próby, aż natrafimy na dawkę właściwą, która da tę samą ilość światła, co preparat nienaświetlany i nie poddawany promieniowaniu laboratoryjnemu. Jeśli naświetlanie i napromienianie preparatu porównawczego będzie dobrane trafnie, to automatyczny wykres natężenia światła przy wygrzewaniu obu preparatów od temperatury 270°C do 330°C okaże się identyczny. Takie nakładanie się krzywej jarzenia wywołanej sztucznym napromienieniem na krzywą jarzenia wynikłą ze zjawisk naturalnych jest podstawą oznaczania wieku metodą TL.

W dzisiejszym stanie wiedzy opartej na doświadczeniu i na danych teoretycznych (które nie wyjaśniają jeszcze zjawiska "reszkowej termoluminescencji") można wyrazić pogląd, że przedstawiony tu tok postępowania jest jedyną dostatecznie uzasadnioną metodą wyznaczania dawki ekwiwalentnej i termoluminescencyjnego wieku osadów geologicznych. Jednakże dokładność tej metody może zmniejszyć się, jeżeli badany materiał zawiera dużo ziarn (np. skaleni) wykazujących właściwości "dynamiki drugiego rodzaju" (Levy 1983), a także w przypadku, gdy silne napromienianie preparatu po jego naświetleniu spowoduje zmianę stopnia czułości dawkomierza, którym jest właśnie ten preparat. Błąd spowodowany zmianą czułości można wyeliminować wprowadzając odpowiednią poprawkę empiryczną.

Ażby przekonać się, czy zachodzi potrzeba wprowadzania poprawek na zmianę czułości, wykonaliśmy doświadczenie z dwukrotnym naświetlaniem i napromienianiem.

Z osadu pylastego z czasów zlodowacenia odrzańskiego, który wydobyto z głębokości 60-66 m od powierzchni terenu w Zosinie (Polska półn.-wsch.), sporządzono preparat przedstawiający frakcję 50-11 μm. Preparat ten naświetlono lampami w ciągu 48 godzin w celu usunięcia zasobu chronometrycznego. Skutki tego naświetlania wykazał automatyczny wykres zmian jarzenia w funkcji wzrostu temperatury płytki grzejnej. Następnie część materiału naświetlonego, ale nie wygrzewanego napromieniono dawką 1000 Gy w bombie

kobaltowej. Wykres TL materiału wyjętego z bomby wykazał w zakresie 270°-330°C taki sam kształt i taką samą ilość światła, jak preparat naturalny (nie naświetlany lampą i nie napromieniany sztucznie). Ten zgodny przebieg krzywych jarzenia mógł być spowodowany dużym zasobem TL - bliskim stanu nasycenia.

Dalszym etapem było ponowne naświetlenie pod lampami w ciągu 48 godzin części materiału napromienionego dawką 1000 Gy. To ponowne naświetlenie dało na wykresie TL wynik identyczny w zakresie 270 - 330°C z wynikiem pierwszego naświetlania tego preparatu, a więc duża dawka promieniowania gamma i ponowne naświetlenie nie wywołuje zmian w strukturze ziarn i nie przesuwają granicy między termoluminescencją chronometryczną i termoluminescencją resztkową. Zasób termoluminescencji resztkowej odpowiadał dawce 50 Gy.

Ostatnią czynnością w tym doświadczeniu było nałożenie takiej samej dawki (1000 Gy) na preparat, który już raz otrzymał, a później był naświetlany lampami w ciągu 48 godzin. Skutek tego ponownego napromienienia był zbliżony do wyniku poprzedniego napromienienia. Wykresy jarzenia parokrotnie powiawiane nie są na tyle zgodne, by można było na pewno stwierdzić, czy zaszły wyraźne zmiany czułości preparatu na skutek ponawiania dawki. Rozbieżności wynikają głównie z rozrzutu przypadkowego i ze zbyt małej stabilności aparatury. Nie można wykluczyć kilkuprocentowych zmian czułości preparatu raczej w kierunku zwiększenia czułości. Sprawa pozostaje więc otwarta.

Podobny schemat doświadczenia przyjęto przy badaniu próbki osadu pobranej zimą z lodu w jeziorze Szczawińskim (na południe od Gostynina) przez dr Bogumiła Wicika. Jest to zamulony drobny piasek, który stanowi warstewkę bezpośrednio podściełającą w rdzeniu osad jeziorny. (W rdzeniu jako głębokość próbki podano 10,2 - 10,32 m.)

Naświetlanie preparatu frakcji 50-111 μ m trwało za każdym razem około 48 godzin. Dawki gamma stosowano 10 razy słabsze niż w doświadczeniu poprzednim, tj. 100 Gy. Nie stwierdzono po drugim naświetlaniu żadnej uchwytnej zmiany w przebiegu granicy między TL resztkową i TL chronometryczną. Z porównania wykresów po drugim i po pierwszym napromienianiu wynikałoby, że nie można wykluczyć zmiany czułości o kilka procent - w tym przypadku raczej w kierunku zmniejszenia się czułości.

Z obu doświadczeń można wyciągnąć wniosek, że przy określaniu dawek ekwiwalentnych trzeba liczyć się z możliwością błędów co najmniej kilkuprocentowych.

Przy porównywaniu wykresów jarzenia preparatów dwukrotnie naświetlanych zwróciliśmy uwagę na fakt, że zasób chronometryczny w zakresie temperaturowym 270-330°C wyładowuje się nie tylko bezpośrednio, ale częściowo także przez przemieszczanie się na razie do pułapek odpowiadających temperaturom od około 200 do około 80°C. w tej części krzywej jarzenia powstaje stopniowo szeroki, niski garb. Podczas długiego naświetlania lampą

garb ten wzrasta, a później zanika. Ponieważ zasób TL rozlokowany w pułapkach odpowiadających tej części krzywej jarzenia nie przechowuje się długo w zwykłej temperaturze otoczenia i powoli rozprasza się, przeto można określić ten rodzaj wyładowywania mianem dwuetapowego: większa część zasobu "wysokotemperaturowego" zanika w czasie naświetlania, a reszta - przemieszczona do płytszych pułapek - rozładowuje się w powolnym tempie później, już po zakończeniu naświetlania. Zjawisko powstawania garbu niskotemperaturowego na skutek naświetlania preparatu można zauważyć m.in. na wykresie przedstawiającym termoluminescencję piasków obrzeżenia pustyni Thar w Indiach (Singhvi, Sharma i Agraval, 1982).

Maximum wysokości tego wtórnego garbu odpowiada temperaturze około 145°C . Po stronie wyższych temperatur rozładowywanie się garbu jest coraz wolniejsze.

Przedstawione wyniki doświadczeń z próbkami z Zosina i z Jeziora Szczańskiego wskazują, że wysłonecznianie i napromienianie do 1000 Gy nie powoduje rażących zmian czułości materiału mineralnego. Zupełnie inaczej przedstawia się sprawa ze stosowaną dawniej procedurą polegającą nie na imitacji zjawiska naturalnego, nasłoneczniania, lecz na wygrzewaniu badanego materiału do temperatury rzędu 400°C .

W celu zbadania, czy wygrzewanie próbek do temp. 400°C zmienia właściwości materiału mineralnego, próbkę z Zosina wygrzaną do temp. 400° podzieliłiśmy na trzy części, a preparaty napromieniliemy następującymi dawkami gamma: 840 Gy , 1000 Gy i 1300 Gy . Wszystkie trzy napromienienia wywołały w zakresie około 300°C praktycznie jednakową termoluminescencję (niezależnie od różnic w dawkach), przy czym ilość wydzielanego światła była znacznie większa, niż w doświadczeniu poprzednio opisanym, w którym dawkę 1000 Gy nakładano na materiał nie wygrzewany. Na skutek wygrzewania poprzedzającego napromienianie czułość materiału wzrosła o około 64% , a dawka 840 Gy doprowadziła już termoluminescencję do poziomu nasycenia.

Doświadczenie wykazało, że wygrzewanie do 400°C zmienia właściwości minerałów, nie powinno więc być stosowane do oznaczania wskaźników wieku. Wyjątek stanowiąc będą przypadki, gdy już w warunkach naturalnych lub na skutek działalności ludzkiej w przeszłości zaszło ogrzanie materiału do tak wysokiej temperatury, np. w czasie pożarów lub w paleniskach.

Chronometryczny zasób potencjalnej energii jarzenia nagromadza się w ziarnach mineralnych jako skutek promieniowania bądź docierającego z sąsiedztwa, bądź pochodzącego z samych ziarn - z zamkniętych tam atomów promieniotwórczych. Tak czy inaczej energia ta pochodzi przeważnie z samego badanego osadu, a więc jej dawkę roczną można w przybliżeniu zliczyć znając zawartość ciał promieniotwórczych w badanej próbce.

Do określenia udziału powszechnie występujących pierwiastków radioaktywnych stosujemy w warszawskim laboratorium prawie od 10 lat metodę spektrometryczną polegającą na zliczaniu impulsów promieni gamma o energii

charakterystycznej dla potasu promieniotwórczego (^{40}K), dla radu C (czyli bizmutu ^{214}Bi) i dla toru C' (czyli talu ^{230}Tl). Udziału rodziny ^{235}U nie badamy, ponieważ w osadach lądowych jest on bardzo mały i dla TL nie ma znaczenia. Przyjmujemy, że rodziny uranu 238 i toru reprezentowane są w próbkach osadów geologicznych i w naszych wzorcach - rudzie uranowej z Fanay (Francja) i ferritorycie z Sudetów - przez wszystkie człony znajdujące się w równowadze radiacyjnej. Jest oczywiście możliwe, że w rzeczywistości w próbkach osadów jest nieco więcej uranu 238 i toru 232 niż wypada w naszych obliczeniach opartych na zawartości promieniotwórczych izotopów bizmutu i talu, a to z powodu częściowej ucieczki gazowych pośrednich członów tych rodzin - radonu i toronu. Jednakże - jeśli idzie o roczną dawkę promieniowania osadu, to taka ucieczka nie ma praktycznego znaczenia, bo główną część energii promienistej dają człony poradonowe i potoronowe. Na przykład pierwiastki potomne radonu dostarczają ponad 97,6% energii gamma produkowanej przez rodzinę uranu, a tylko prawie 2,3% przypada na człony przedradonowe. Niedomiar w obliczaniu dawki rocznej wynikający z zaniżenia udziału członów przedradonowych będzie przypuszczalnie mniejszy od błędów pomiarowych. Wprawdzie przy obliczaniu energii alfa zaniżenie byłoby znaczniejsze, ale w przypadku warstw, które osadzone były w wodzie i również obecnie są przeważnie mokre, energia alfa nie ma dużego znaczenia dla termoluminescencji, gdyż słabo przenika do wnętrza ziarn-detektorów. Najbardziej istotna dla termoluminescencji jest część rodziny uranu rozpoczynająca się od radonu i zawartość tych właśnie pierwiastków jest dostatecznie dokładnie oznaczana metodą spektrometrii gamma. Dla termoluminescencji nie jest ważne, ile radonu wyemigrowało, bo obliczenie dawki opiera się tylko formalnie na zawartości uranu, a faktycznie - na ilości bizmutu. W przypadku ucieczki nawet połowy radonu roczna dawka gamma pochodząca od całej rodziny uranu 238 obliczona na podstawie bizmutu okaże się zaniżona zaledwie o 1,15%. Taka niedokładność jest dopuszczalna. A co do ucieczki toronu, to tym bardziej nie może mieć ona istotnego znaczenia dla dawki rocznej, ponieważ atomy toronu istnieją przeciętnie tylko 3,1 minuty, przeistaczając się następnie w ciało stałe, a więc ich ucieczka z zamkniętego pojemnika musi być znikoma. Przy stosowaniu metody spektrometrycznej gamma nie uwzględniamy więc ucieczki tych dwóch gazów. Zresztą w głębi osadów geologicznych może zachodzić raczej stały przepływ niż ucieczka, a to na bilans raczej nie wpływa.

Duże znaczenie przypisujemy wnioskowi z badań porównawczych. Staramy się prowadzić spostrzeżenia równoległe badając co najmniej dwie frakcje z próbki.

LITERATURA

- Bell, W.T., i Mejdahl, V., 1981, Beta source calibration and its dependency on grain transparency; *Archaeometry* 23-2, 231-240.
- Bowman, S.G.E., 1976, Thermoluminescence dating, the evaluation of radiation dosage; unpublished D. Phil. thesis, Oxford Univ.
- Hütt, G. i Smirnow, A., 1982, Thermoluminescence dating in the Soviet Union; *PACT*, 7, 97-103.
- Levy, P.W., 198.. (w druku), Thermoluminescence and optical bleaching in minerals exhibiting second order kinetics and other charge retrapping characteristics; *PACT*, 9.
- Levy, P.W., 198.. (w druku), Characteristics of thermoluminescence glow curves for materials exhibiting more than one glow peak; *PACT*, 9.
- Mejdahl V., 1982, An automated procedure for thermoluminescence dating of pottery and burn stones; *PACT*, 7, 83-96.
- Niewiadomski, T., i Ryba, E., 1977, Rozkład mocy dawek promieniowania naturalnego w Polsce; Raport N° 960/D Instytutu Fizyki Jądrowej, Kraków.
- Singhvi, A.K., Sharma, Y.P. i Agrawal, D.P., 1982, Thermoluminescence dating of sand dunes in Rajasthan, India; *Nature*, 295, 313-315.
- Wintle, A.G., 1980, Thermoluminescence dating: a review of recent applications to non-pottery materials; *Archaeometry* 22, 113-122.
- Wintle, A.G., 1982, Thermoluminescence dating in archaeology and Quaternary geology; *PACT*, 7, 55-61.
- Wintle, A.G. i Huntley, D.J., 1982, Thermoluminescence dating of sediments; *Quaternary Science Reviews*, 1, 31-53.
- Zimmerman, D.W., 1971, Thermoluminescence dating using fine grains from pottery; *Archaeometry*, 13, 29-52.

НАБЛЮДЕНИЯ ИЗ ЛЕТ 1973-1983 ОТНОСИТЕЛЬНО ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНОГО МЕТОДА ПОКАЗАТЕЛИ ВОЗРАСТА ГЕОЛОГИЧЕСКИХ ОТЛОЖЕНИЙ

Резюме

Известно, что экспонирование образца породы на солнечный свет уничтожает только часть светосуммы задержанной в этом образце.

Мы проверили, что излучение гамма, а также облучение образца светом ртутной лампы с люминофором, не изменяет уровня остаточной термолюминесценции — так называемой "первичной" или "кристаллической светосуммы"; но уже предварительное, ориентировочное испытание указало, что излучение гамма в некоторой степени изменяет чувствительность образца; это значит, что излучение гамма влияет на кристаллическую решетку зерен и на количество активных ловушек. Но если это и произошло, изменение чувствительности не превышало [в наших опытах +20% или -10%.

В другом эксперименте мы пытались проверить эффективность излучения альфа в накапливании светосуммы в сухом и в очень влажном песке, а также в пылеватых суглинках и глинах различной влажности. Результаты этих опытов следующие:

Суглинок или глинаЭффективность альфа

почти сухие, но при большой влажности атмосферы,	принято 100%
сухие (влажность атмосферы - около 40%)	около 60%
очень влажные, взятые из под уровня воды	" 10%

Песок

почти сухой (влажность атмосферы большая)	принято 100%
сухой (влажность атмосферы - около 40%)	около 74%
очень влажный, взятый из под уровня воды	" 17%

THERMOLUMINESCENCE AGE INDICATORS FOR GEOLOGICAL
SEDIMENTS: OBSERVATIONS 1973-1983

С у м м а р у

It is generally know that an exposure of a soil sample to the sunlight annihilates only a fraction of its TL contents.

We report an experiment in which we check whether the TL residual level and the sensivity of a soil sample are changed by gamma irradiation and/or by exposures of sample to the light from a mercury lamp. We found that neither gamma irradiation nor the exposure to the mercury lamp changed the TL residual level. The exposure to the mercury lamp does not change the sensitivity of a sample. Preliminary results indicate, however, that gamma irradiation may slightly change the sensitivity of a sample. This suggests that the internal structure of the cristal (e.g. the number of active traps) may be changed by gamma irradiation.

If this is a real effect, the sensitivity does not changes by more than 20%.

In another experiment we check whether the efficiency of the alpha irradiation of a soil sample changes as a result of decrease or of increase of the soil humidity. The results are:

Loam or clayAlpha efficiency

almost dry (but great atmospheric humidity)	(admitted) 100%
dry (atmospheric humidity about 40%)	about 60%
wet, from below the water table (saturated)	" 10%

Sand

almost dry (but great atmospheric humidity)	(admitted) 100%
dry (atmospheric humidity about 40%)	about 74%
wet, from below the water table (saturated)	" 17%