

Andrzej BLUSZCZ

Instytut Fizyki Politechniki Śląskiej
w Gliwicach

STANOWISKO POMIAROWE I METODYKA POMIARÓW W LABORATORIUM TL W GLIWICACH

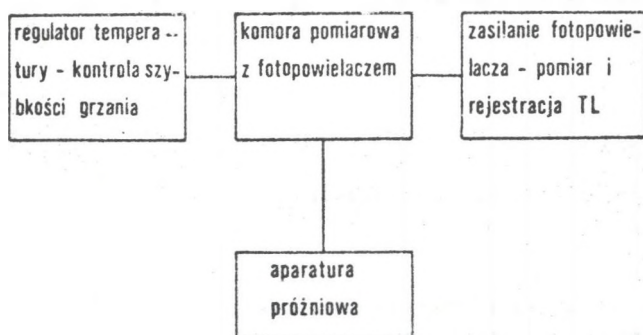
Streszczenie. Artykuł przedstawia konstrukcję i parametry eksploatacyjne aparatury używanej do pomiarów termoluminescencji osadów w celu ich datowania metodą TL. Zbudowana aparatura ma czułość wystarczającą do pomiaru termoluminescencji kwarcu indukowanej dawką pochłoniętą promieniowania γ równą 1 Gy (0,1 krad). Próżniowo- i światłoszczelna komora pomiarowa umożliwia grzanie próbki w atmosferze beztlenowej z szybkością od 0 do 20 K/s i do temperatury końcowej od 300 do 1000 K (200 - 700°C). Wynikiem pomiaru jest wykres: termoluminescencja (prąd fotopowielacza) - temperatura. Dawkę równoważną ED wyznacza się dla gruboziarnistej frakcji ($\sim 100 \mu\text{m}$) ziaren kwarcu wypreparowanej z osadu. Stosuje się w tym celu metodę R - I lub odtworzeniową z uwzględnieniem testu plateau. Dawkę roczną wyznacza się na podstawie pomiarów koncentracji U, Th i K w osadzie. Pomiary koncentracji wykonuje się spektrometrem scytylacyjnym promieniowania γ . Dokładność wyznaczenia wieku metodą termoluminescencji szacuje się na około 20%.

1. APARATURA POMIAROWA

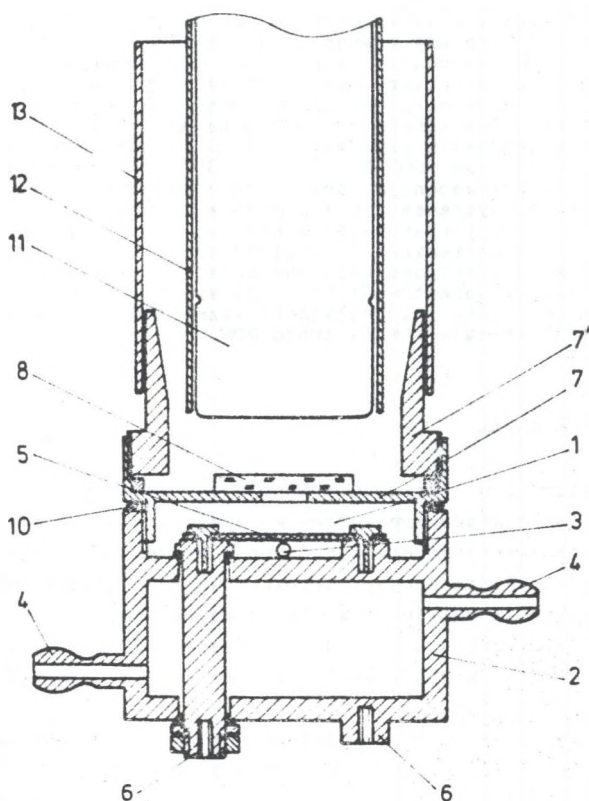
W Laboratorium TL w Gliwicach wykonuje się datowania osadów metodą TL. Samo Laboratorium zostało wyposażone w aparaturę do pomiarów termoluminescencji próbek ziaren mineralnych oraz w aparaturę do prepatatyki wstępnej próbek. Naświetlania dawkami promieniowania γ bomby kobaltowej są wykonywane w Instytucie Onkologii w Gliwicach, a pomiary koncentracji pierwiastków promieniotwórczych w osadach w Zespole Fizyki Ciała Stałego Instytutu Fizyki Politechniki Śląskiej w Katowicach (Zastawny, Rabsztyń, 1985).

Używana w Laboratorium TL w Gliwicach aparatura do pomiarów termoluminescencji została zaprojektowana i zbudowana wyłącznie w celu datowania termoluminescencyjnego osadów. Zasadnicze jej części przedstawia schemat blokowy (rys. 1). Przy projektowaniu i budowie kierowano się głównie następującymi założeniami:

- prostota konstrukcji i obsługi oraz wymiennosc poszczególnych części i podzespołów,
- możliwości stopniowego ulepszania, rozbudowy i automatyzacji,



Rys. 1. Schemat blokowy aparatury do pomiaru termoluminescencji

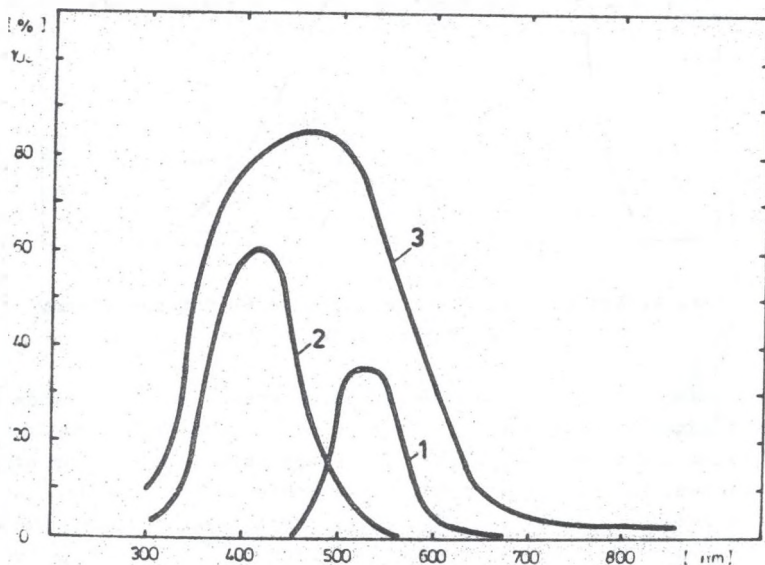


Rys. 2. Komora pomiarowa z oprawą filtrów i fotopowielaczem

1 - komora pomiarowa; 2 - chłodnica; 3 - przepust termopary; 4 - końcówki doprowadzające i odprowadzające wodę; 5 - grzejnik; 6 - elektryczne wyprowadzenia końcówek grzejnika; 7, 7' - oprawa filtrów; 8 - filtr optyczny; 10 - uszczelka typu "o-ring"; 11 - fotopowielacz; 12 - ekran elektrostatyczny i magnetyczny; 13 - obudowa fotopowielacza

- czułość i dokładność wystarczająca do pomiaru termoluminescencji kwarcu odpowiadającej dawce pochłoniętej rzędu dziesięciu Gy,
- użycie dostępnych w kraju materiałów, części i gotowej aparatury elektronicznej.

Zasadniczym fragmentem aparatury jest komora, w której podgrzewa się badaną próbkę ziaren (rys. 2). Komora jest próżniowo- i światłoszczelna. Zawiera grzejnik wykonany ze stali żarowytrzymałej, termoparę w płaszczu stalowym o średnicy 0,5 mm oraz doprowadzenia prądu elektrycznego do grzejnika. Dwa króćce łączą komorę z aparaturą próżniową. Bezpośrednio do komory przylega, tworząc z nią konstrukcyjną całość, chłodnica wodna. Przyprzylgająca woda chłodzi komorę wraz z grzejnikiem oraz pośrednio fotopowielacz. Skracza to czas stygnięcia do kilku minut oraz utrzymuje prąd ciemny fotopowielacza na odpowiednio niskim poziomie^{x)}. Od góry komora zamykana jest oprawą filtrów optycznych, która jest jednocześnie podstawą do mocowania fotopowielacza. Oprawa jest wkręcana w komorę i po jej wykręceniu możliwy jest dostęp do wnętrza i wymiana próbki. Połączenie między oprawą filtrów a komorą uszczelnia uszczelka typu "o-ring".

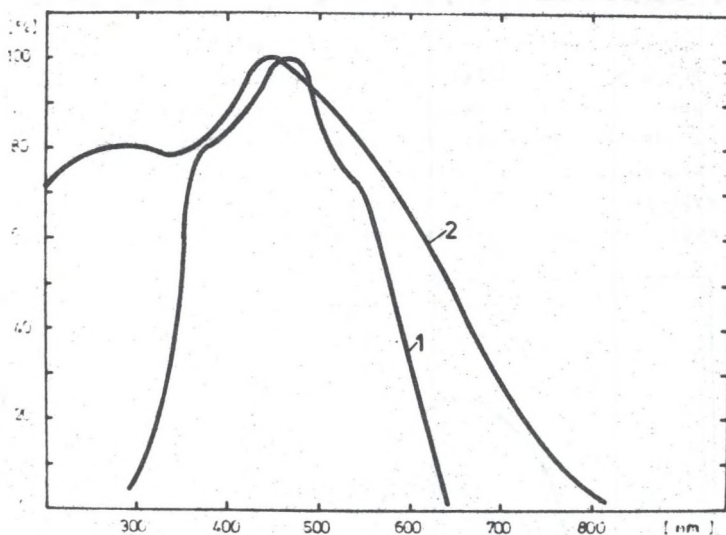


Rys. 3. Charakterystyki filtrów optycznych; transmitancja w % [w funkcji długości fali światła

1 - filtr VG11 zielony, 2 - szkło optyczne fioletowe, 3 - filtr BG23 niebieski

^{x)} Używany ostatnio fotopowielacz M12FS35 ma w tych warunkach prąd ciemny poniżej 1 nA przy napięciu 1200 V. Termoluminescencja próbek ziaren kwarcu wywołuje prądy fotopowielacza od około 10 do 1000 nA przy tym samym napięciu. Odpowiada to kilku nA dla ziaren kwarcu o masie 2 mg które pochłonęły dawkę 10 Gy.

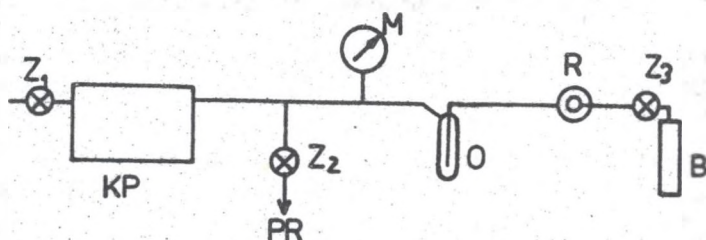
Filtry umieszczone w oprawie dobrane są tak, by ograniczały promieniowanie termiczne próbki podgrzanej do wysokiej temperatury, a jednocześnie dodatkowo przepuszczały promieniowanie termoluminescencji. Charakterystyki używanych filtrów przedstawia rys. 3. Oprawę z filtrami można łatwo wymieniać i dobrać do różnych próbek i fotopowielaczy. Fotopowielacz z dzielnikiem napięcia, osłoną elektrostatyczną i magnetyczną umieszczony jest w świetło-szczelnej obudowie. Rysunek 4 przedstawia charakterystyki widmowe fotokatod fotopowielaczy dobranych do pracy w aparaturze.



Rys. 4. Względne czułości widmowe (w %) fotopowielaczy
1 - M12FS35; 2 - M12FVC51

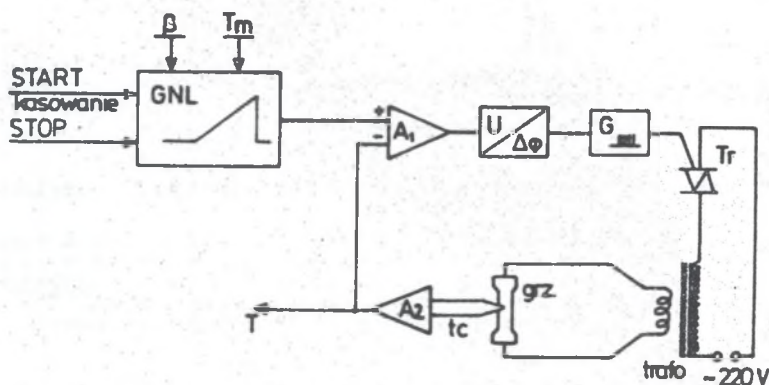
Próżniową część aparatury przedstawia schematycznie rys. 5. Składa się na nią: pompa rotacyjna, zawory, reduktor, osuszacz, manometr i butla ciśnieniowa z gazem obojętnym. Tej części aparatury używa się do opróżniania, przed pomiarem, komory z powietrza, a następnie do wypełniania lub przepłukiwania gazem obojętnym (Ar, N₂, CO₂). Postępowanie takie zmniejsza zawartość tlenu i pary wodnej w komorze, których obecność może być przyczyną tzw. fałszywej termoluminescencji. W pomiarach termoluminescencji wymagany jest powtarzalny i liniowy^{x)} wzrost temperatury próbki. W opisywanej aparaturze zapewnia to specjalny blok elektroniczny - "Programowany

^{x)} W przypadku datowania termoluminescencyjnego liniowość wzrostu temperatury nie jest konieczna, wystarcza sama powtarzalność procesu nagrzewania próbki. Liniowy wzrost temperatury konieczny jest dla porównywalności krzywych TL otrzymywanych w różnych laboratoriach, a także przy badaniu kinetyki procesów prowadzących do termoluminescencji i wyznaczania parametrów struktury energetycznej badanego kryształu.



Rys. 5. Schemat aparatury próżniowej

KP - komora pomiarowa; PR - pompa rotacyjna; B - butla ciśnieniowa z gazem obojętnym; Z₃ - zawór; R - reduktor ciśnienia; O - osuszacz gazu; M - manometr; Z₁ - zawór zapowietrzający komorę; Z₂ - zawór odcinający pompę rotacyjną



Rys. 6. Schemat blokowy programowanego regulatora temperatury

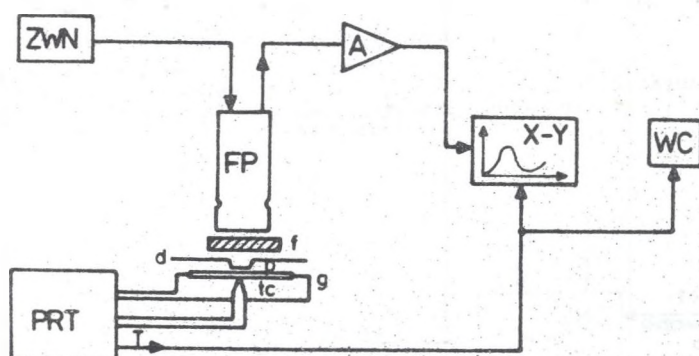
GNL - generator napięcia liniowo narastającego; A₁ - różnicowy wzmacniacz błędu regulacji; U/Δφ - przetwornik napięcia błędu na kąt zapłonu triaka, G - generator impulsów zapłonu triaka; Tr - triak; trafo - transformator dopasowujący; Grz - grzejnik; tc - termopara; A₂ - wzmacniacz napięcia termopary

regulator temperatury" (rys. 6). Steruje on płynącym przez grzejnik prądem, wartość którego dochodzić może do 100 A, i dzięki sprzężeniu zwrotnemu przez termoparę zapewnia liniowy (z dokładnością lepszą od 1%^{xj})

^{xj} Nieliniowość całkowita wzrostu temperatury w zakresie do 800°K (550°C) jest mniejsza od 1% (przy szybkości grzania do 10 K/s).

wzrost temperatury grzejnika od temperatury pokojowej do temperatury maksymalnej. Szybkość wzrostu temperatury oraz temperaturę maksymalną wybiera się przed pomiarem. Temperatura może wzrastać z szybkością do 20 K/s, a temperatura maksymalna może wynosić do 1000 K (700°C).

W czasie podgrzewania ziaren minerału występuje zjawisko termoluminescencji - emitowane jest promieniowanie widzialne lub bliski nadfiolet. Promieniowanie to rejestruje fotopowielacz elektronowy. Wywołany termoluminescencją prąd fotopowielacza po wzmożeniu jest rejestrowany w funkcji temperatury grzejnika przez rejestrator X-Y. Uzyskiwane wykresy, tzw. krzywe termoluminescencji, są później podstawą do obliczania dawek geologicznych. Schemat blokowy aparatury do pomiaru i rejestracji termoluminescencji przedstawia rys. 7.



Rys. 7. Schemat blokowy aparatury do pomiaru i rejestracji termoluminescencji

ZWN - zasilacz fotopowielacza; FP - fotopowielacz; PRT - programowany regulator temperatury; tc - termopara; g - grzejnik; d - przesłona; p - pojemnik z próbką; f - filtr optyczny; T - sygnał napięcia proporcjonalny do temperatury grzejnika, A - wzmacniacz prądu fotopowielacza; X-Y - rejestrator; WC - voltomierz cyfrowy do odczytu temperatury

Cała aparatura, z wyjątkiem rejestratora X-Y i części próżniowej, umieszczona jest w szafie metalowej. Aparatura elektroniczna jest oddzielona i dodatkowo ekranowana od części wykonawczej regulatora temperatury. Aparatura (z wyjątkiem części wykonawczej regulatora) zasilana jest ze stabilizatora napięcia sieciowego przez dodatkowy filtr ograniczający zakłócenia przemysłowe. W dotychczasowych pomiarach stwierdzono, że minimalna dawka pochłonięta przez kwarc, którą można wyznaczyć przy użyciu opisanej aparatury, ma wartość rzędu 1 Gy.

2. METODYKA POMIARU WIEKU TERMOLUMINESCENCYJNEGO

Datowanie termoluminescencyjne wykonuje się w Laboratorium TL w Gliwicach metodą wtrąceń kwarcowych (Fleming, 1970). Wyróżnić w nim można

cztery zasadnicze etapy (por. Bluszcz, 1985):

- wstępna obróbka próbek,
- wyznaczanie dawki rocznej,
- wyznaczanie dawki równoważnej,
- obliczanie wieku.

2.1. Wstępna obróbka próbek

Z porcji osadu o masie ~ 400 g wydziela się ziarna kwarcu o granulacji $\sim 100 \mu\text{m}$. Substancje organiczne usuwa się z próbki przez kolejne traktowanie roztworami HCl i NaOH w temperaturach pokojowych i przepłukiwanie wodą destylowaną. Nierozpuszczane po tej fazie części nieorganiczne usuwa się traktując próbkę roztworem kwasu HF, który ponadto rozpuszcza zewnętrzną warstwę ziaren kwarcu. Przed traktowaniem próbki kwasem HF przesiewa się ją przez sita, oddzielając ziarna o granulacjach 88-100 μm i 100-150 μm . Szczegóły obróbki wstępnej zawarte są w tabeli 1.

Tabela 1

Preparatyka wstępna próbek osadów

Lp.	Kolejne czynności	Uwagi
1	Wyznaczanie wilgotności próbki	
2	Suszenie próżniowe	$T \leq 313 \text{ K } (40^\circ\text{C})$
3	Traktowanie 2% HCl	$T \approx 293 \text{ K } (20^\circ\text{C}), t=48 \text{ h}$
4	3-krotne płukanie w H_2O destylowanej	
5	Traktowanie 4% NaOH	$T \approx 293 \text{ K } (20^\circ\text{C}), t=48 \text{ h}$
6	4-krotne płukanie w H_2O destylowanej	
7	Suszenie próżniowe	$T \leq 313 \text{ K } (40^\circ\text{C})$
8	Odsiewanie frakcji 88-100 μm i 100-150 μm	
9	Traktowanie 1N HF	$T \approx 293 \text{ K } (20^\circ\text{C}),$ $t \approx 100 \text{ min}$
10	5-krotne płukanie w H_2O destylowanej	
11	Usuwanie wody pod próżnią lub przez płukanie w metanolu	$T \leq 313 \text{ K } (40^\circ\text{C})$

Wszystkie czynności wykonuje się osłaniając próbkę od bezpośredniego światła słonecznego i sztucznego.

2.2. Wyznaczanie dawki rocznej

Dawkę roczną wyznacza się na podstawie wyników pomiarów koncentracji ^{238}U , ^{232}Th i ^{40}K w próbce osadu. Pomiarów koncentracji radioizotopów dokonuje się spektrometrem scyntylacyjnym promieniotwórczości dla próbki o masie ~ 250 g. Szczegóły związane z takim sposobem pomiaru koncentracji radioizotopów są omówione w pracy Zastawny, Rabsztyń (1985). Wielkość dawki rocznej oblicza się według wzorów i wykresów zamieszczonych w pracy Ple-

minga (1979) uwzględniając rozmiar ziaren kwarcu, grubość warstwy rozpuszczonej w HF i wilgotność osadu. Zakłada się przy tym, że U i Th są w równowadze z produktami rozpadu i że efektywność promieniowania wynosi 0,14. Do dawki rocznej dolicza się 0,15 mGy/rok od promieniowania kosmicznego. Na podstawie powtarzanych pomiarów zawartości U, Th i K dla kilku porcji tego samego osadu szacuje się dokładność wyników obliczenia dawki rocznej na 10-20%. Przykład obliczenia dawki rocznej dla próbki Frombork przedstawia tabela 2.

Tabela 2

Wyznaczanie dawki rocznej dla próbki Frombork 1
Jednostką jest 1 μ Gy/rok

Koncentracja izotopów	Dawka pochłonięta	Po poprawce na			Dawka efektywna	Uwagi	
		granulację	wytrawianie	efektywność			
Th 2,3 ppm	α 1702	374	120	17	17	koncentracje średnie z dwóch pomiarów	
	β 66	57	55	-	55		
	γ 118	-	-	-	118		
U 0,72 ppm	α 2004	381	95	13	13		
	β 105	95	92	-	92		
	γ 83	-	-	-	83		
K 1,13 ppm	β 786	760	734	-	734	po poprawce na wilgotność 1,65%	
	γ 236	-	-	-	236		
Nr laboratoryjny		GD-TL1		$\Sigma\alpha$	30	30	
Data pomiaru		maj 1982	paźdz. 1982	$\Sigma\beta$	880	845	
Frombork 1				$\Sigma\gamma$	437	430	
				Dawka prom. kosmicznego		150	
				Dawka całkowita		1455	

2.3. Wyznaczanie dawki geologicznej

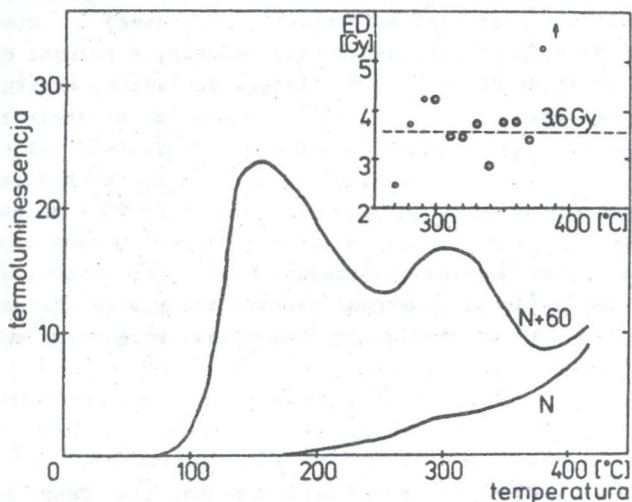
Otrzymane w wyniku obróbki wstępnej ziarna kwarcu służą do wyznaczenia dawki geologicznej metodą R- Γ ; w przypadku stwierdzenia nieliniowego wzrostu TL stosuje się metodę odtworzeniową (por. Wintle, Huntley, 1982). Porcje ziaren kwarcu o masie około 1 g są nasświetlane promieniowaniem γ bomby kobaltowej. Dokładność określenia dawki γ pochłoniętej przez ziarna wynosi 1,5%, a ich wielkość mieści się w granicach 10-200 Gy i zależy od

spodziewanej dawki geologicznej. Konieczną w obu metodach redukcję TL uzyskuje się w wyniku działania na ziarna kwarcu promieniowania ultrafioletowego przez 1 dobę. Źródłem tego promieniowania jest lampa HQV-125W (firmy Osram) umieszczona w odległości 15-20 cm od próbki.

Przygotowuje się w ten sposób najczęściej osiem porcji (jedną do pomiaru TL naturalnej, jedną do pomiaru TL naturalnej zredukowanej promieniowaniem UV, trzy do pomiaru TL wywołanej dodatkowymi dawkami γ i trzy do pomiaru TL dodatkowej zredukowanej promieniowaniem UV). Z każdej porcji odważa się 3-5 próbek o masach 2 mg lub 10 mg, dla których wykonuje się pomiary TL. Próbkę są podgrzewane z szybkością 3 K/s od temperatury otoczenia do temperatury końcowej 400-450°C (700 K).

Obliczenia dawki geologicznej wykonuje się z uwzględnieniem testu plateau (por. Wintle, Huntley, 1982) w sposób następujący (por. rys. 8):

- otrzymane z kilku próbek tej samej porcji ziaren krzywe termoluminescencji uśrednia się w przedziale temperatur 270° - 400°C,
- tak uśrednione krzywe TL dzieli się w przedziale 270° - 400°C na kilkanaście równych odcinków i dla każdego z nich oddzielnie wyznacza się dawkę równoważną ED metodą R- Γ ,
- sporządza się następnie wykres otrzymanych wartości ED w funkcji temperatury,



Rys. 8. Ilustracja testu plateau dla próbki Olkusz 79/1 naświetlonej dawką 60 Gy. Nad wykresami krzywych jarzenia TL zaznaczono wyniki obliczeń ED dla kilkunastu temperatur z przedziału 270° - 400°C. Wartość $ED = \frac{(N) \times 60}{(N+60) - (N)}$ [Gy], gdzie (N) i (N+60) oznaczają odpowiednie wartości TL po uwzględnieniu TL resztkowej po naświetleniu lampą UV. W przedziale 290° - 370°C wartości ED, przy uwzględnieniu rozrzutu wynikającego z błędów pomiarów, układają się na stałym poziomie. Wartością ED w tym przedziale jest 3,6 Gy

- ustala się przedział temperatur, w którym wartości te układają się na stałym poziomie,
- wartość średnią z tego przedziału przyjmuje się za wartość dawki równoważnej ED.

2.4. Wyznaczanie wieku

Wiek termoluminescencyjny osadu oblicza się dzieląc dawkę geologiczną przez dawkę roczną:

$$T = \frac{ED}{D_r}$$

Błąd wieku ΔT wyznacza się ze wzoru:

$$\Delta T = T \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta ED}{ED}\right)^2 + \left(\frac{\Delta D_r}{D_r}\right)^2},$$

gdzie ΔED i ΔD_r są błędami standardowymi wielkości ED i D_r . Względny błąd wyznaczenia wartości efektywnej dawki rocznej D_r na podstawie pomiarów koncentracji U, Th i K wynosi od kilku do 20%, najczęściej około 10%. Średni rozrzut wartości TL w kolejnych pomiarach jest tego samego rzędu - około 10%. Wynikający stąd błąd wartości ED, otrzymanej z pomiarów naturalnej TL i pomiarów TL próbek, najczęściej trzech, z różnymi dodatkowymi dawkami wynosi od kilku do około 20%. Dlatego dokładność wyniku datowania można szacować na 20%.

PODZIĘKOWANIE

Autor dziękuje panu mgr inż. Andrzejowi Wybrańcowi, który jeszcze jako student Politechniki Śląskiej wykonał elektroniczny blok "Programowanego regulatora temperatury" umożliwiającą prawidłową pracę całej aparatury.

LITERATURA

- Bluszcz A., 1985, Podstawy datowania osadów metodą TL. Zesz. Nauk. Pol. Śl., Ser. Mat.-Fiz., Nr 46, 109-124.
- Fleming S.J., 1970, Thermoluminescent dating: refinement of the quartz inclusion method: *Archaeometry* 12, 133-145.
- 1979, Thermoluminescence techniques in archaeology: Clarendon Press, Oxford.
- Wintle A.G., Huntley D.J., 1982, Thermoluminescence dating of sediments, *Quaternary Science Reviews*, v. 1, 31-53.
- Zastawny A., Rabsztyn B., 1985, Spektrometr gamma do pomiarów aktywności toru, radu i potasu; pierwsze pomiary; Zesz. Nauk. Pol. Śl., Ser. Mat.-Fiz., Nr 46, 169-178.

ИЗМЕРИТЕЛЬНАЯ АППАРАТУРА И МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

В ТЛ - ЛАБОРАТОРИИ В ГЛИВИЦЕ

Р е з ю м е

В статье представлено конструкцию и технические параметры аппаратуры для измерения возраста четвертичных отложений термоллюминесцентным методом. Чувствительность аппаратуры достаточна для измерения термоллюминесценции кварца ответствующей поглощенной гамма дозе равной 1 Gy (0,1 krad). Светонепроницаемая измерительная вакуумная камера позволяет нагревать образец в инертных газах со скоростью $0-20 \text{ K s}^{-1}$ до конечной температуры 300-1000 K. Результатом измерения является диаграмма: термоллюминесценция (ток|фотоумножителя) - температура. Геологическую дозу определяют для крупнезернистой ($\sim 100 \mu\text{m}$) фракции кварца выделенной из образца, применяя метод R-Г или метод воспроизведения с учетом критерия плато. Годичную дозу определяют из результатов измерений концентрации U, Th, K производимых сцинтилляционным спектрометром гамма излучения. Точность определения возраста термоллюминесцентным методом оценивают равной 20%.

AN APPARATUS AND A METHOD OF MEASUREMENTS IN TL LABORATORY
IN GLIWICE

S u m m a r y

The paper presents the construction and technical parameters of the apparatus used for TL-dating of sediments. A sensitivity of the constructed apparatus is good enough for measuring quartz's TL corresponding to the absorbed dose of 1 Gy (0,1 krad). The special light-tight and vacuum chamber enables to heat a sample in an oxygen-free inert gas atmosphere with a heating-rate up to 20 K s^{-1} to a final temperature up to 1000 K (700°C). The TL (i.e. photomultiplier current) vs. temperature diagram is obtained as a result of a measurement. A geological ED is determined by means of the quartz - inclusion method for quartz grains extracted from a sediment. A plateau-test is applied to glow-curves and R-Г or restoring method is used for the determination of the ED value. Annual dose-rate is calculated from concentrations of U, Th and K measured by means of the gamma scintillation spectrometry. An overall accuracy of TL-age is estimated to be ca. 20%.