

Nowe metody stymulacji optycznej dla czytnika TL/OSL Jupiter

Streszczenie. Optycznie stymulowaną luminescencję (OSL) obserwujemy w napromieniowanych izolatorach lub półprzewodnikach poddanych działaniu światła o odpowiedniej energii. Intensywność OSL jest zwykle proporcjonalna do zaabsorbowanej dawki promieniowania. Z tego powodu metoda OSL stosowana jest często w dozymetrii promieniowania jonizującego oraz datowaniu w archeologii i geologii. Charakterystyki OSL mogą dostarczyć też informacji na temat parametrów pułapek i centrów rekombinacji materiału. Najczęściej stosowaną metodą stymulacji optycznej jest stymulacja światłem ciągłym w zakresie od kilku do kilkunastu sekund. W niedawno opracowanym czytniku TL/OSL Jupiter przewidziano kilka nowych metod stymulacji. Umożliwiają one m.in. wyznaczenie charakterystyki długożyciowej detektora oraz energii aktywacji pułapek.

Abstract. Optically stimulated luminescence (OSL) is observed in irradiated insulators or semiconductors exposed to light of the appropriate energy. OSL Intensity is normally proportional to the dose of absorbed radiation. For this reason OSL method is often used in radiation dosimetry and dating in archeology and geology. OSL characteristics might also provide information about the parameters of traps and recombination centers of the material. The most common method of optical stimulation is the stimulation by continuous light in the range from a few to several seconds. The recently developed TL/OSL reader Jupiter provides several new methods of stimulation. They allow, among others, determination of long-lived characteristics of a detector and the activation energy of traps. (**New methods of optical stimulation for Jupiter TL/OSL reader.**)

Słowa kluczowe: optycznie stymulowana luminescencja (OSL), termoluminescencja (TL), dozymetria luminescencyjna, pułapki nośników ładunku, centra rekombinacji.

Keywords: optically stimulated luminescence (OSL), thermoluminescence (TL), luminescence dosimetry, trap charge carriers, recombination centers.

Wprowadzenie

Sposoby pomiaru dawek promieniowania jonizującego są systematycznie udoskonalane od kilkudziesięciu lat. Szczególnie często wykorzystuje się w tym celu zmianę charakterystyki luminescencyjnej materiału pełniącego rolę detektora. Pierwszym i najczęściej wykorzystywanym zjawiskiem była termoluminescencja (TL) [1]. Odczyt napromienionego detektora (pomiar luminescencji) dokonuje się podczas jego podgrzewania. Konstrukcja grzejnika, od której wymaga się powtarzalności i precyzji w realizowaniu liniowego wzrostu temperatury, nastęrcza niemało problemów. Dlatego też, od kilkunastu lat najbardziej obiecującą metodą stała się optycznie stymulowana luminescencja (OSL). Technikę OSL zaczęto stosować w dozymetrii promieniowania jonizującego stosunkowo niedawno, od drugiej połowy lat 90. Rolę detektora OSL pełni odpowiednio przygotowany materiał (np. $Al_2O_3:C$) w osłonie światłoszczelnej [2, 3]. W obecności promieniowania jonizującego stany pułapkowe detektora zapełniają się. Pułapki są metastabilne i charakteryzują się bardzo długim czasem życia. Zapisana informacja jest, więc trwała – można ją odczytać nawet po wielu latach (nawet tysiącach lat) od naświetlenia. Określając liczbę nośników uwieczonych w pułapkach możemy wyliczyć dawkę promieniowania pochłoniętą przez detektor. Odczyt dokonuje się w specjalnym urządzeniu (czytniku) wykorzystującym technikę OSL. Idea tej metody polega na stymulacji napromienionego detektora bardzo silnym światłem o długości fali λ_s (np. światło zielone). Światło to powoduje uwolnienie nośników ładunku znajdujących się w pułapkach i w efekcie, poprzez rekombinację promienistą, emisję luminescencji. Część tej luminescencji w zakresie krótkofalowym $\lambda < \lambda_s$ możemy zarejestrować odcinając się od bardzo silnej składowej λ_s odpowiednim układem filtrów. Dzięki eliminacji modułu grzania możliwa jest bardziej zwarta, kompaktowa budowa czytnika. Kolejną korzyścią jest też krótszy czas pomiaru i możliwość jego wielokrotnego powtarzania, gdyż pomiar OSL nie zeruje całkowicie zapisanej informacji.

W typowych pomiarach dozymetrycznych podstawowym parametrem, który otrzymujemy z krzywej OSL jest sumaryczna liczba impulsów w określonym interwale czasu,

czyli pole powierzchni pod krzywą. To zwykle wystarczająca ilość informacji do określenia dawki pochłoniętego promieniowania, jednak dzięki odpowiedniej metodzie stymulacji optycznej możemy uzyskać znacznie więcej informacji na temat badanego detektora. Nowe metody stymulacji będą zaimplementowane w modułowym czytniku TL/OSL Jupiter. Czytnik został opracowany w ramach projektu PBS1/A9/4/2012. W kolejnych rozdziałach zaprezentujemy dwie metody służące badaniu długoczasowej charakterystyki odpowiedzi detektora OSL oraz jedną metodę, która umożliwia uzyskanie informacji na temat rozkładu energetycznego aktywnych optycznie pułapek.

Badanie długożyciowej charakterystyki detektorów OSL

W pomiarze CW-OSL (continuous wave OSL) detektor (lub inny materiał – np. próbka archeologiczna) oświetlany jest światłem ciągłym, zwykle monochromatycznym, przez okres co najmniej kilku sekund. Całkowity czas wyświecania napromienionego detektora zależy od wielu czynników – m.in. rodzaju materiału (luminofora), długości fali oraz natężenia światła stymulacji. W dozymetrii promieniowania jonizującego istotna jest stabilność odpowiedzi detektora OSL w skali godzin, dni a nawet lat po napromienianiu. Równie ważna jest także stabilność odpowiedzi detektora w przypadku wielokrotnie przeprowadzanych pomiarów CW-OSL. Badanie tych charakterystyk detektora jest procesem dość skomplikowanym i długotrwałym. Poniżej prezentujemy dwie metody, które umożliwiają wykonanie takich pomiarów w prostszy i bardziej efektywny sposób.

Metoda zmiennego opóźnienia OSL

W metodzie zmiennego opóźnienia OSL detektor zostaje napromieniony odpowiednio dużą dawką, po czym dokonujemy wielu (kilkunastu – kilkudziesięciu), następujących po sobie odczytów CW-OSL z określonym interwalem czasu Δt_{d1} . Pomiaru są na tyle krótkie, że nie powodują całkowitego wyświecania detektora. Po zakończonym pierwszym cyklu dokonujemy „zerowania” detektora poprzez wybielenie termiczne (podgrzanie do odpowiednio wysokiej temperatury) lub optyczne (naświetlanie diodami LED). Alternatywnie, możemy użyć też nowego detektora z tej samej partii produkcyjnej.

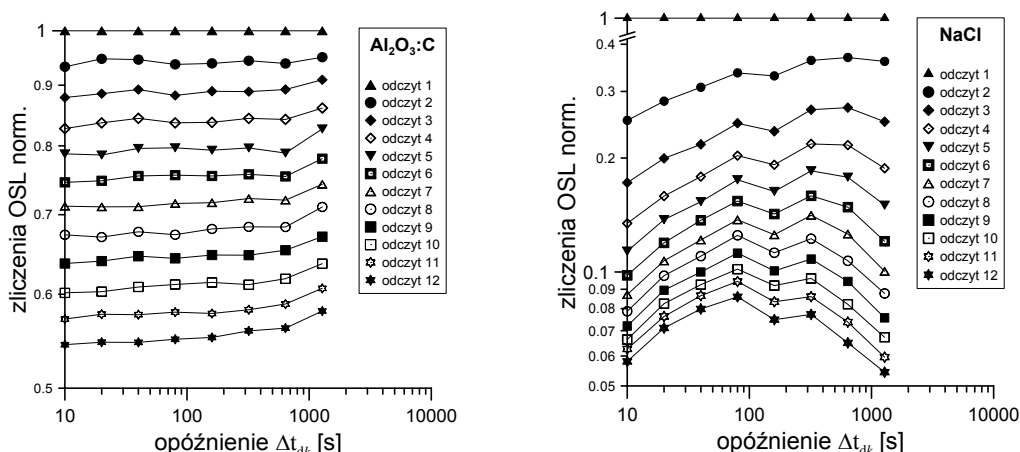
Następnie dokonujemy kolejnego napromienienia identyczną dawką i wykonujemy następną serię odczytów CW-OSL ze zwiększonym interwałem czasu Δt_{dk} . Zmiana interwału opóźnienia może być dokonywana w różny sposób, jednak najbardziej polecana wydaje się praktyka zwiększania wartości interwału mnożąc go przez stały czynnik, np. 2. Zatem w k -tym cyklu mamy:

$$(1) \quad \Delta t_{dk} = 2^{k-1} \Delta t_{d1}$$

Interwał liczony jest pomiędzy początkami kolejnych pomiarów CW-OSL w danym cyklu. Ilość cykli jest dowolna. Liczbę zliczeń w każdym cyklu normalizujemy do pierwszego odczytu i przedstawiamy na wykresie w funkcji czasu, jaki upłynął od początku pomiaru. Metodę zaimplementowano początkowo w czytniku OSL Helios [4-6].

Jest rzeczą oczywistą, że dla idealnego (tzn. doskonale stabilnego) detektora OSL wartość odczytu CW-OSL nie

powinna zależeć od interwału opóźnienia. Zatem, na wykresie powinniśmy otrzymać punkty ułożone wzdłuż równoległych poziomych prostych. Rysunek 1 przedstawia dwa takie wykresy. Wykres po lewej stronie przedstawia charakterystykę komercyjnie dostępnego detektora wykonanego z $Al_2O_3:C$ (Landauer, USA). Linie pomiarowe dla każdego odczytu układają się dość dobrze wzdłuż równoległych prostych. Zasadniczo odmienne zachowanie można zaobserwować dla kryształów chemicznie czystego chlorku sodu (wykres po prawej stronie). Początkowo, wraz ze wzrostem czasu opóźnienia odczyt OSL rośnie, po czym zaczyna maleć. Przedziały te można przypisać odpowiednio do zjawiska regeneracji i utraty (*fading*) sygnału OSL. Teoretyczne wyjaśnienie współistnienia obu tych efektów nie jest proste i będzie przedmiotem następnych badań. Z punktu widzenia dozymetrii takie zachowanie detektora jest jednak niekorzystne i świadczy o jego niestabilności.



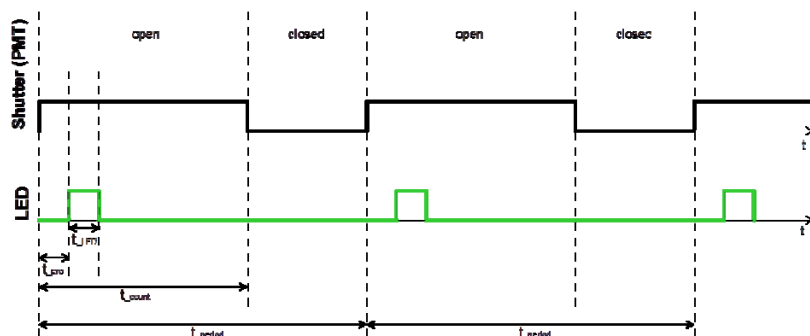
Rys. 1. Przykład znormalizowanych zliczeń CW-OSL w stałym przedziale czasu mierzonych sekwencyjnie ze zmiennym opóźnieniem. Pomiar wykonano dla komercyjnego detektora $Al_2O_3:C$ oraz kryształów czystego chlorku sodu (NaCl)

Metoda próbkowania OSL

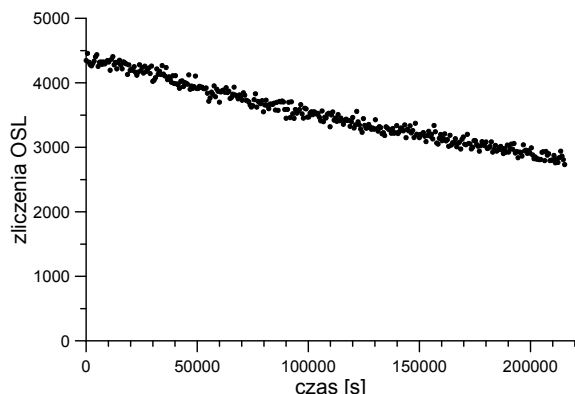
Interesującą modyfikacją techniki CW-OSL jest metoda impulsowa POSL (*pulsed optically stimulated luminescence*). W metodzie tej detektor stymulowany jest krótkimi impulsami światła. Odpowiedź OSL mierzona jest w interwałach pomiędzy impulsami. Dzięki separacji czasowej stymulacji i detekcji możliwe jest zmniejszenie tła luminescencji. Wydaje się dość naturalne, że odpowiedź impulsowa OSL powinna być proporcjonalna do aktualnego obsadzenia aktywnych stanów pułapkowych. W długookresowym badaniu wielkość impulsowej luminescencji może obrazować zmianę obsadzenia pułapek.

Diagram czasowy metody próbkowania OSL pokazany jest na rysunku 2. W metodzie tej, stymulacji optycznej

dokonyjemy bardzo krótkimi, pojedynczymi impulsami t_{LED} . Odstęp między impulsami jest bardzo długi i określony jest parametrem t_{period} . Pomiar luminescencji odbywa się zarówno w trakcie stymulacji jak i po jej zakończeniu w czasie t_{count} . Otwarcie przesłony fotopowielacza musi być dokonane z pewnym wyprzedzeniem t_{pre} . Przykładowa charakterystyka popularnego detektora $Al_2O_3:C$ (Landauer, USA) pokazana jest na rysunku 3. Detektor ten jest bardzo stabilny w długiej skali czasowej. Obniżenie intensywności sygnału impulsowego OSL spowodowane jest jedynie normalnym ubytkiem nośników ładunku w czasie oświetlania detektora. W wielu materiałach o bardziej złożonej strukturze pułapkowej krzywa próbkowania może mieć inny, nawet nie monotoniczny charakter.



Rys. 2. Diagram czasowy metody próbkowania OSL



Rys. 3. Krzywa próbkowania OSL dla detektora $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$

Badanie rozkładu energetycznego aktywnych pułapek detektorów OSL

Parametrem wyróżniającym rodzaj pułapki, określanym zwykle w pomiarach OSL jest optyczny przekrój czynny σ . Nie jest on jednoznacznie określony, lecz zależy od optycznej głębokości pułapki E oraz parametrów związanych ze sprzężeniem pułapki z siecią krystaliczną. W najprostszym modelu uwzględniającym udział w jonizacji pułapki pojedynczego modu drgań sieci i przy założeniu, że częstość modu dla pułapki i stanów w paśmie przewodnictwa jest taka sama, parametrami tymi są czynnik Huang-Rhysa S oraz częstość modu drgań $-\hbar\omega/2\pi$ [7, 8]:

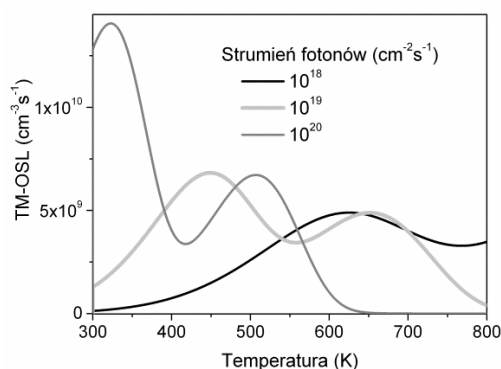
$$(2) \sigma_i(h\nu) = \frac{\kappa_i}{\nu\sqrt{\pi}} \int_0^\infty x^2 \exp\left\{-\kappa_i^2 \left[x - (h\nu - E_i)\right]^2\right\} dx$$

$$(3) \kappa_i = \left[2S_i (\hbar\omega_i)^2 \coth\left(\frac{\hbar\omega_i}{2kT}\right) \right]^{\frac{1}{2}}$$

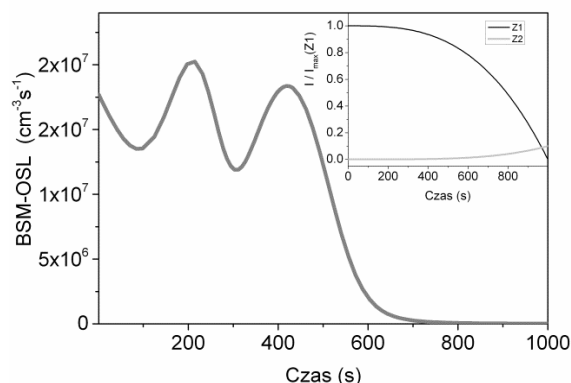
Jak widać, optyczny przekrój czynny zależy także od temperatury T , w której przeprowadza się pomiar OSL oraz od energii fotonów wykorzystywanych do optycznej stymulacji $h\nu$ (energii stymulacji). Dotychczasowe metody pomiaru OSL, polegające na pomiarze zaniku luminescencji w czasie stymulacji ze stałą energią $h\nu$ oraz stałym (CW-OSL) lub liniowo narastającym (LM-OSL) strumieniu fotonów ϕ nie pozwalają na określenie głębokości optycznej pułapki oraz parametrów związanych ze sprzężeniem pułapki z siecią krystaliczną. Zmianę stosunku prawdopodobieństw uwolnienia elektronów z różnych pułapek w czasie eksperymentu OSL można uzyskać przez wywołanie zmian optycznego przekroju czynnego. Można to zrealizować za pomocą zmian energii stymulacji. Metoda ta nakłada nietyralne wymagania techniczne na źródło stymulacji, które w odpowiednio szerokim zakresie zmienności energii stymulacji powinno mieć wydajność pozwalającą na zachowanie dużego, stałego strumienia fotonów [7]. Przez wysoki koszt takiego układu pomiarowego metoda polegająca na ciągłej zmianie energii stymulacji nie może być szeroko wykorzystywana.

Podobne ograniczenia nie dotyczą intensywnie badanych ostatnio dwóch nowych propozycji stymulacji. Są to metoda pomiaru OSL przy liniowym wzroście temperatury próbki (*termicznie modulowana OSL*, TM-OSL) oraz metoda pomiaru OSL przy modulacji kształtu pasma stymulacji (*band shape modulation OSL*, BSM-OSL). Metoda BSM-OSL wykorzystuje fakt, że tzw. efektywny optyczny przekrój czynny (który w praktyce odpowiada za emisję OSL) można modyfikować w czasie stymulacji optycznej przez zmianę kształtu pasma stymulacji. Zmiana

taka może być zrealizowana technicznie w prosty sposób z wykorzystaniem dwóch źródeł światła o różnych pasmach spektralnych przez odpowiednią modyfikację natężenia świecenia obu źródeł. np. przez ciągłą zmianę ich stosunku natężenia. Na rysunku 4 i rysunku 5 pokazujemy numeryczne przykłady obrazujące odpowiedź luminescencyjną detektora w przy użyciu metod TM-OSL oraz BSM-OSL. Obie metody zostały zaimplementowane w czytniku Jupiter, dzięki umieszczeniu komory pomiarowej na programowanym elektronicznie regulatorze temperatury i zastosowaniu układu oświetlacza z systemem monochromatycznych diod LED podzielonych na dwie niezależnie sterowane grupy.



Rys. 4. Symulowane krzywe TM-OSL - stymulacja światłem o długości 620 nm z szybkością grzania 1 K/s w przypadku dwóch typów pułapek o głębokości optycznej 2,9 i 3,0 eV, czynnik Huang-Rhysa równy 20 oraz częstość modu drgań równa 20 meV dla różnych strumieni fotonów. Piki TL w tym przypadku występują w temperaturach powyżej 800 K



Rys. 5. Symulowana krzywa BSM-OSL dla modelu dwóch pułapek o głębokościach 2,9 i 3,1 eV oraz parametrach sprzężenia elektron-fonon $S = 20$, $\hbar\omega/2\pi = 20$ meV. Wstawka przedstawia zmiany natężenia dwu źródeł światła stymulacji optycznej o maksimach w 2,1 oraz 2,6 eV i szerokości 0,1 eV. Zmiany natężenia świecenia źródeł Z1 i Z2 są odpowiednio zgodne ze wzorami: $I_{\max}(1-(t/1000)^3)$ i $I_{\max}(t/1000)^3/10$, I_{\max} odpowiada strumieniowi fotonów $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

Podsumowanie

Metody luminescencyjne pozwalające na wyznaczenie dawki promieniowania jonizującego w praktyce zdominowały rozmaite obszary dozymetrii indywidualnej a także techniki datowania luminescencyjnego w geologii i archeologii. Metody te są systematycznie udoskonalane. Opracowany niedawno czytnik TL/OSL Jupiter został wyposażony w nowe metody stymulacji optycznej, które pozwalają m.in. na badanie długookresowej stabilności detektorów OSL oraz wyznaczanie energii aktywacji aktywnych poziomów pułapkowych metodą optyczną.

Praca naukowa finansowana ze środków Narodowego Centrum Badań i Rozwoju w latach 2012-2016 jako projekt badawczy PBS1/A9/4/2012.

Autorzy: dr Ewa Mandowska, dr hab. Arkadiusz Mandowski, Akademia im. Jana Długosza, Instytut Fizyki, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: e.mandowska@ajd.czyst.pl, a.mandowski@ajd.czyst.pl; prof. dr hab. inż. Andrzej Bluszcz, dr hab. inż. Grzegorz Adamiec, Politechnika Śląska, Instytut Fizyki, Centrum Naukowo-Dydaktyczne, ul. Konarskiego 22B/211, 44-100 Gliwice, dr hab. inż. Paweł Biłski, dr hab. inż. Barbara Marczevska, Instytut Fizyki Jądrowej PAN, ul. Radzikowskiego 152, 31-342 Kraków, dr hab. Alicja Chruścińska, dr Krzysztof Przegiętka, Uniwersytet Mikołaja Kopernika, Instytut Fizyki, ul. Grudziądzka 5, 87-100 Toruń.

LITERATURA

- [1] Chen R., McKeever S.W.S., Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, *World Scientific*, Singapore, 1997
- [2] Yukihiro E.G., McKeever S.W.S., Optically stimulated luminescence fundamentals and applications, Wiley, 2011
- [3] Botter-Jensen L. and McKeever S.W.S., Optically stimulated

- luminescence dosimetry, Elsevier, Amsterdam, (2003)
- [4] Mandowski A., Mandowska E., Kokot L., Biłski P., Olko P., Marczevska B., Mobilny system wykrywania zagrożeń radiacyjnych przy użyciu mikrodetektorów OSL, *Elektronika: konstrukcje technologie i zastosowania*, 51 nr. 2, (2010), 136-138
- [5] Biernacka M., Mandowski A., Investigation of regeneration effect of blue luminescence in NaCl using variable delay optically stimulated luminescence (VD-OSL), *Radiat. Meas.*, 56, (2013), 31-35
- [6] Mandowski A., Biernacka M., Anomalous regeneration of OSL in sodium chloride - Experiment and modeling, *Radiat. Meas.*, 71, (2014), 265-269
- [7] Chruścińska A., Kijek N., Thermally modulated optically stimulated luminescence (TM-OSL) as a tool of trap parameter analysis, *J. Lumin.* 174, (2016), 42-48
- [8] Chruścińska A., Influence of spectral width of stimulations band on the shape of OSL curve, *Radiat. Meas.* 56, (2013), 18-22