

## Nowa metoda spektralnie rozdzielczego pomiaru ultra-słabej luminescencji

**Streszczenie.** Luminescencja wykorzystywana jest szeroko w nowoczesnych technikach dozymetrii promieniowania jonizującego oraz w datowaniu materiałów geologicznych i datowaniu przedmiotów w archeologii. Do tego celu najczęściej wykorzystywane są zjawiska termoluminescencji (TL) i optycznie stymulowanej luminescencji (OSL). We wszystkich tych zastosowaniach niezwykle istotna jest czułość pomiaru. Z tego względu standardową techniką pomiarową jest metoda pomiaru natężenia emitowanego światła za pomocą fotopowielacza pracującego w trybie zliczania fotonów (photon counting). Ta metoda pomiaru zapewnia bardzo dobry stosunek sygnału do szumu jednak nie daje żadnej informacji o rozkładzie spektralnym emisji. Pomiar spektralny z użyciem nawet najbardziej zaawansowanych chłodzonych detektorów wielokanałowych CCD możliwy jest jedynie dla znacznie silniejszego światła, przekraczającego o kilka rzędów wielkości próg detekcyjny fotopowielacza. W artykule omawiamy nową metodę pomiaru spektralnego, która pozwala rejestrować znacznie niższą emisję.

**Abstract.** Luminescence is widely used in modern techniques of ionizing radiation dosimetry and in dating of geological materials and dating objects in archeology. For this purpose, the most frequently used are thermoluminescence (TL) and optically stimulated luminescence (OSL). In all these applications, the measurement sensitivity is extremely important. For this reason, the standard measurement technique is the method of measuring the intensity of emitted light by a photomultiplier operating in the photon counting mode. This measurement method provides a very good signal-to-noise ratio but does not give any information about the spectral distribution of the emission. Standard spectral measurements, using even the most advanced multichannel cooled CCD detectors, are only possible for much stronger light, exceeding several orders of magnitude the photomultiplier detection threshold. This article discusses a new method of spectral measurement that allows recording of much lower emissions. (**New method of spectrally resolved measurement of ultra-weak luminescence**).

**Słowa kluczowe:** termoluminescencja (TL), spektralnie rozdzielcza termoluminescencja (SR-TL), dozymetria luminescencyjna

**Keywords:** thermoluminescence (TL), spectrally resolved thermoluminescence (SR-TL), luminescence dosimetry

### Wprowadzenie

Metody dozymetrii luminescencyjnej wykorzystują dość często spotykaną właściwość materiałów dielektrycznych do zapamiętywania dawki pochłoniętego promieniowania jonizującego. Najlepsze detektory nie tracą tej informacji przez tysiące a nawet miliony lat. W celu odczytania informacji o dawce konieczne jest zastosowanie odpowiedniej stymulacji – termicznej lub optycznej. Metoda termoluminescencji (TL) wykorzystuje stymulację termiczną. Uprzednio napromieniony detektor (lub naturalny minerał) jest ogrzewany w ciemności w ten sposób, że przyrost temperatury jest stały w jednostce czasu. W odpowiednio wysokiej temperaturze detektor zaczyna emitować światło, którego ilość jest zazwyczaj proporcjonalna do pochłoniętej dawki promieniowania [1]. Zależność intensywności emisji w funkcji temperatury nosi nazwę krzywej jarzenia (*glow curve*). Najpopularniejszymi termoluminoforami są domieszkowane kryształy fluorku litu – LiF:Mg,Ti; LiF:Mg,Cu,P oraz minerały, takie jak kwarc lub skalenie.

Niektóre detektory są wrażliwe na światło. Wykorzystuje to metoda optycznie stymulowanej luminescencji (OSL). W metodzie tej napromieniony detektor jest oświetlany światłem monochromatycznym o długości fali  $\lambda_s$ . Powoduje to emisję światła o długości fali  $\lambda$ , zwłaszcza w zakresie krótkofalowym  $\lambda < \lambda_s$ . Wyodrębnienie bardzo słabej luminescencji na tle silnego światła stymulacji nie jest proste. Dokonuje się tego za pomocą odpowiednio dobranych filtrów optycznych. Najczęściej używanymi detektorami OSL są kryształy  $Al_2O_3:C$  oraz tlenku berylu BeO.

W obu przypadkach – TL i OSL rejestrację luminescencji przeprowadza się zwykle za pomocą fotopowielacza pracującego w trybie zliczania fotonów (*photon counting*). Metoda ta zapewnia znakomitą czułość pomiaru oraz bardzo dobry stosunek sygnału do szumu. W ten sposób tracimy jednak wszelką informację o rozkładzie spektralnym emisji. Pomiaru spektralnego – zwłaszcza TL i fosforescencji, są wykonywane stosunkowo rzadko ze względu na złożoność metody pomiarowych, a także

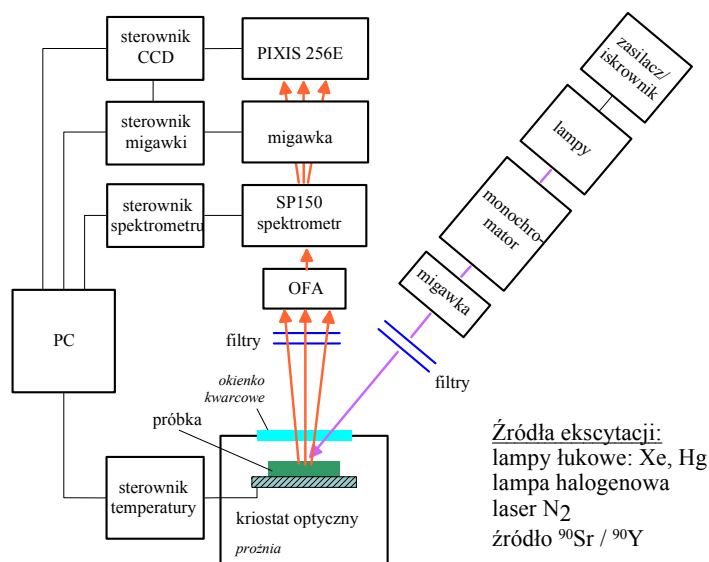
konieczność stosowania znacznie wyższych dawek promieniowania [2]. Można szacować, że nawet przy użyciu najbardziej czułych chłodzonych detektorów wielokanałowych CCD minimalny próg detekcji jest ok.  $10^{-4}$ - $10^{-5}$  razy większy niż w przypadku standardowo używanego fotopowielacza. W artykule omawiamy nową metodę pomiarów spektralnych, która pozwala rejestrować znacznie niższą emisję luminescencji.

### Metody pomiaru

Układ z detektorem wielokanałowym CCD

Typowy układ do pomiaru spektralnie rozdzielczej termoluminescencji (SR-TL) z wykorzystaniem chłodzonej kamery CCD przedstawia rysunek 1.

Sygnał luminescencji doprowadzany jest światłowodem do spektrografu poprzez układ kolimujący OFA. W spektrografie światło ulega rozszczepieniu i pada na linijkę CCD. Dla zapewnienia maksymalnej czułości przy minimalnym poziomie szumów, układ CCD jest chłodzony termoelektrycznie do optymalnej temperatury pracy wynoszącej  $-70^\circ C$ . Stosując odpowiednie oprogramowanie do kalibracji układu i akwizycji danych można rejestrować spektralnie rozdzielczą luminescencję w dowolnym zakresie długości fali, dobierając odpowiednio charakterystyki siatek dyfrakcyjnych i typ samego chipu CCD. W konfiguracji pokazanej na rysunku 1 akwizycja danych jest możliwa w zakresie 200-1100 nm. Pomiaru za pomocą wielokanałowego detektora CCD są bardzo dokładne i dobrze sprawdzają się w rozmaitych zastosowaniach. Problemy pojawiają się w sytuacji, gdy ilość światła jest bardzo mała. Rozmiar pojedynczego piksela to  $26 \times 26 \mu m$ . Efektywna powierzchnia rejestrująca jest więc bardzo mała. Zaawansowane kamery CCD dają możliwość tzw. *binningu*, czyli programowego łączenia wielu sąsiadujących ze sobą pikseli. Tym niemniej, powierzchnia nawet takich połączonych obszarów jest nieporównanie mniejsza od apertury typowego fotopowielacza [3].

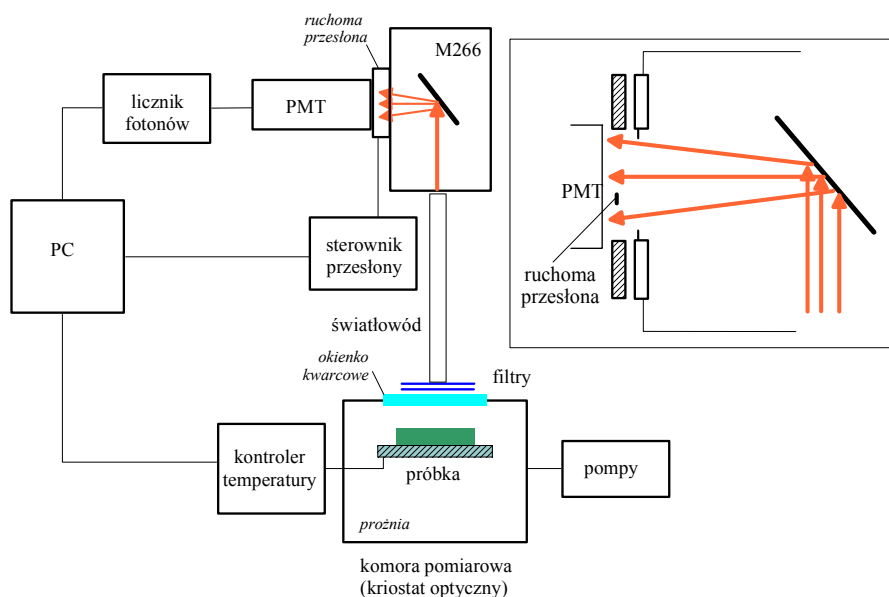


Rys.1. Schemat układu do detekcji SR-TL. Oznaczenia: OFA - optyczny adapter światłowodu, Pixis 256E – kamera CCD chłodzona termoelektrycznie [3]

### Układ z ruchomą przesłoną

W pomiarach SR-TL intensywność świecenia zmienia się w czasie. Należy, więc zebrać możliwie pełną informację spektralną w możliwie krótkim czasie. Idea prezentowanej metody polega na zastąpieniu kamery CCD

fotopowielaczem, przed którym zamontowana jest cienka, sterowana elektronicznie przesłona. Schemat układu przedstawia rysunek 2. W tym układzie niemal całe światło wychodzące ze spektrografu trafia do fotopowielacza.



Rys.2. Schemat układu z ruchomą przesłoną. Oznaczenia PMT – fotopowielacz, M266 – spektrograf. Rysunek wewnętrzny przedstawia ruchomą przesłonę i szeroką wiązkę światła padającą na fotopowielacz

Zestawienie ilości rejestrowanego światła z informacją o położeniu przesłony daje zakodowaną informację o rozkładzie spektralnym emisji. W ogólnym przypadku zależność ta może być dość skomplikowana. Dobierając szczególny tryb ruchu przesłony i przedziałów czasowych, w których rejestruje się emisję, można te relacje nieco uprościć. Taki szczególny tryb rejestracji pokazany jest na rysunku 3. Przesłona porusza się schodkowo z krokiem  $\Delta t$ , za każdym razem zasłaniając wąski zakres spektralny o szerokości  $\Delta\lambda$  pomiędzy wartościami maksymalnymi  $[\lambda_{\min}, \lambda_{\max}]$ . Każdy pionowy szary pasek w chwili  $t$

reprezentuje zakres spektralny, który jest aktualnie rejestrowany przez fotopowielacz. Ilość rejestrowanego światła jest, więc stosunkowo duża.

Jeden ze sposobów odcodowania informacji spektralnej przedstawiono na rysunku 4. Punkty, dla których dokonywany jest pomiar zaznaczono otwartymi kółkami. Załóżmy, że obserwowany proces luminescencyjny jest wolnozmienny w stosunku do czasu, w którym następuje skanowanie po pełnym zakresie długości fali. Tym niemniej, by uzyskać pełną informację spektralną dla konkretnej wartości czasu  $t$ , dokonujemy interpolacji liniowej w

punktach oznaczonych czarnymi kropkami. Dzieląc przedział spektralny na  $n$  odcinków, chcemy dla każdego z nich uzyskać informację na temat ilości emitowanego światła  $J(\lambda_i, t_i)$ , gdzie  $i$  jest numerem pojedynczego zakresu spektralnego o wartości średniej  $\lambda_i$ . Wartości mierzone po interpolacji to

$$(1) \quad J_i^{(int)}(\lambda_i, t_i) = \sum_{\substack{k=1, \\ k \neq i}}^n J_k(\lambda_k, t_k)$$

W zapisie macierzowym możemy to przedstawić następująco:

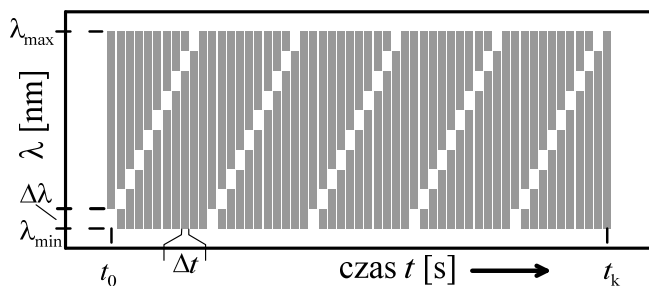
$$(2) \quad \mathbf{J}^{(int)} = \mathbf{A} \cdot \mathbf{J}$$

a więc:

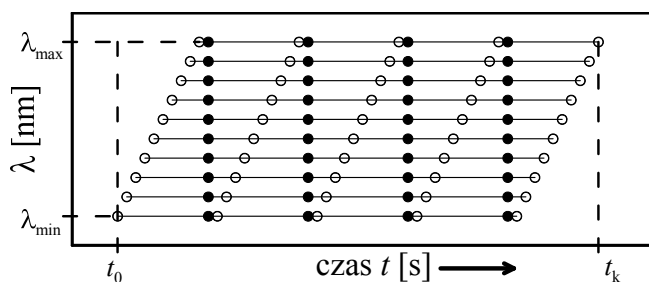
$$(3) \quad \begin{pmatrix} J_1^{(int)} \\ J_2^{(int)} \\ \vdots \\ J_n^{(int)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 1 & \dots & 1 \\ 1 & 0 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 1 \\ 1 & \dots & 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J_1 \\ J_2 \\ \vdots \\ J_n \end{pmatrix}$$

Równanie (2) posiada rozwiązanie w postaci:

$$(4) \quad \mathbf{J} = \mathbf{A}^{-1} \cdot \mathbf{J}^{(int)}$$



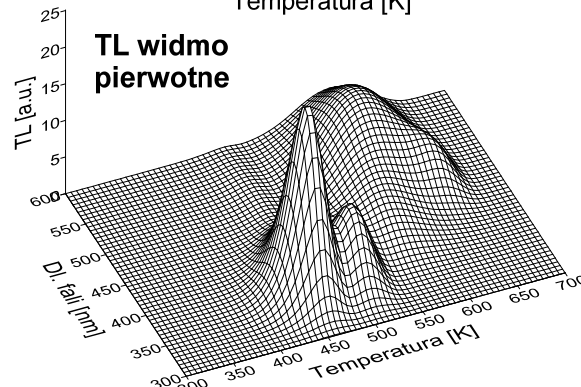
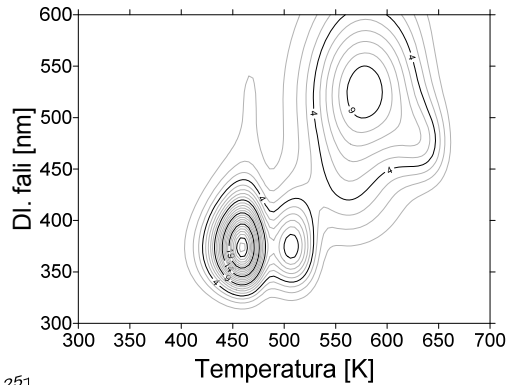
Rys.3. Diagram czasowy rejestracji światła w układzie z ruchomą przesłoną. Każdy pionowy szary pasek w chwili  $t$  reprezentuje zakres spektralny, który jest rejestrowany przez fotopowielacz. Biały prostokąt, to obszar zasłanianie przesłoną



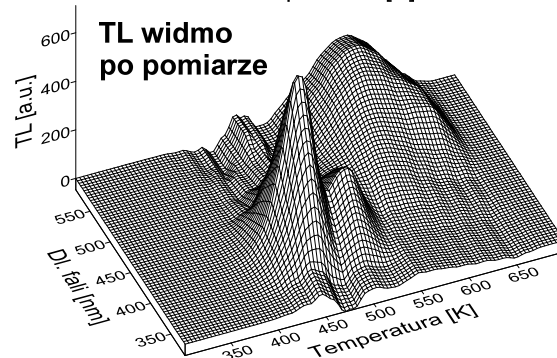
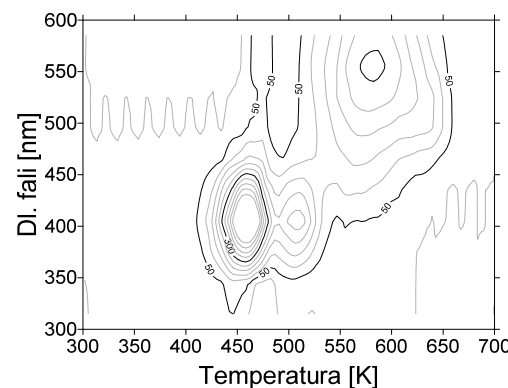
Rys.4. Punkty pomiaru (puste kółka) i punkty interpolacji (pełne kółka) dla diagram czasowego z rysunku 3. Ciągłe linie łączą punkty, które są uwzględniane podczas interpolacji

### Symulacje numeryczne

By sprawdzić skuteczność działania powyższego algorytmu wykonano symulację numeryczną pomiaru spektralnego metodą ruchomej przesłony. W charakterze wzorca poddanego badaniu wykorzystano generowane numerycznie widmo SR-TL dla trzech dyskretnych poziomów pułpkowych i czterech centrów rekombinacji. Widmo to pokazano na rysunku 5. Temperatura zależy liniowo od czasu  $T(t) = T_0 + \beta t$ , gdzie  $\beta = 1$  K/s.



Rys.5. Przykładowe widmo SR-TL obliczone numerycznie dla danego rozkładu pułapek i centrów rekombinacji



Rys.6. Wyniki pomiaru luminescencji o charakterystyce pokazanej na rysunku 5 metodą ruchomej przesłony z wykorzystaniem interpolacji z rysunku 4 i metody obliczeń (4)

Symulację pomiaru spektralnie rozdzielczego przeprowadzono przy następujących założeniach: zakres spektralny 300-600 nm, ilość odcinków  $n = 10$ , czas pojedynczego pomiaru (krok)  $\Delta t = 0,2$  s, czas jednej sekwencji uwzględniający powrót przesłony do położenia początkowego  $\Delta t_{sek} = 0,2$  s. Obliczenia wykonano

uwzględniając efekt eliminowania przez przesłonę określonego zakresu spektralnego w trakcie pomiaru, a następnie wykonując interpolację (rys.4) i operacje macierzowe (4) dla każdego "paska" interpolowanych danych. Rezultat w postaci konturowej i 3D pokazany jest na rysunku 6.

#### **Wnioski**

W artykule przedstawiono nową metodę spektralnie rozdzielczego pomiaru luminescencji. Zastosowanie cienkiej, elektronicznie sterowanej ruchomej przesłony praktycznie nie powoduje osłabienia światła wychodzącego ze spektrografu, równocześnie umożliwiając zakodowanie informacji o jego rozkładzie spektralnym. Metoda może znaleźć zastosowanie do badania wolno zmiennej ultrasłabej emisji – np. fosforescencji i spektralnie rozdzielczej termoluminescencji. Przedstawione rezultaty numeryczne pokazują satysfakcjonującą zgodność danych odtworzonych z danymi wyjściowymi. Na granicy rejestrowanego spektrum obserwujemy pewne artefakty – zwłaszcza w tych miejscach, gdzie intensywność luminescencji podlega dużym zmianom. Testowany przypadek jest dość złożony, mimo to, nawet tak prosty

algorytm dekodowania sygnału oddał dość wiernie charakter widma. Można oczekiwać, że udoskonalenie algorytmów numerycznej obróbki sygnału w metodzie ruchomej przesłony pozwoli polepszyć dokładność otrzymywanych wyników.

*Praca naukowa finansowana ze środków Narodowego Centrum Nauki na podstawie decyzji numer DEC-2012/07/B/ST8/03890.*

**Autor:** dr Ewa Mandowska, Akademia im. Jana Długosza, Wydział Matematyczno-Przyrodniczy, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [e.mandowska@ajd.czest.pl](mailto:e.mandowska@ajd.czest.pl).

#### LITERATURA

- [1] Chen R., McKeever S.W.S., Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, *World Scientific*, Singapore, 1997
- [2] Mandowska E., Biłski P., Ochab E., Świątek J., Mandowski A., TL emission spectra from differently doped LiF:Mg detectors, *Radiat. Prot. Dosim.* 100 (2002), 451–454
- [3] Mandowska E., Mandowski A., Świątek J., Ultraweak Spectrally Resolved Thermoluminescence in Polymers, *Macromol. Symp.* 212 (2004), 251-256